

# Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP2005/018393

International filing date: 28 September 2005 (28.09.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP  
Number: 2004-283238  
Filing date: 29 September 2004 (29.09.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 03 November 2005 (03.11.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland  
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application: 2 0 0 4 年 9 月 2 9 日

出 願 番 号  
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 2 8 3 2 3 8

パリ条約による外国への出願  
に用いる優先権の主張の基礎  
となる出願の国コードと出願  
番号  
J P 2 0 0 4 - 2 8 3 2 3 8  
The country code and number  
of your priority application,  
to be used for filing abroad  
under the Paris Convention, is

出 願 人  
Applicant(s): キヤノン株式会社

2 0 0 5 年 1 0 月 1 9 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

中 嶋



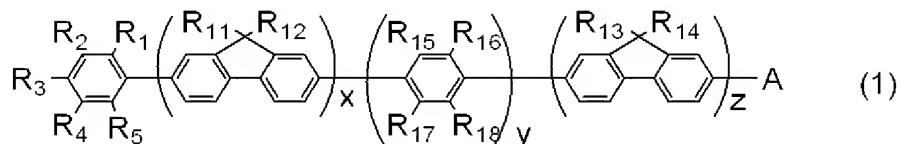
【書類名】	特許願
【整理番号】	0008850-01
【提出日】	平成16年 9月29日
【あて先】	特許庁長官殿
【国際特許分類】	H05B 33/00
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 橋本 雅司
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 岡田 伸二郎
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 滝口 隆雄
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 鎌谷 淳
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 井川 悟史
【発明者】	
【住所又は居所】	東京都大田区下丸子3丁目30番2号
【氏名】	キャノン株式会社内 黒川 三奈子
【特許出願人】	
【識別番号】	000001007
【氏名又は名称】	キャノン株式会社
【代理人】	
【識別番号】	100096828
【弁理士】	
【氏名又は名称】	渡辺 敬介
【電話番号】	03-3501-2138
【選任した代理人】	
【識別番号】	100110870
【弁理士】	
【氏名又は名称】	山口 芳広
【電話番号】	03-3501-2138
【連絡先】	担当
【手数料の表示】	
【予納台帳番号】	004938
【納付金額】	16,000円
【提出物件の目録】	
【物件名】	特許請求の範囲 1
【物件名】	明細書 1
【物件名】	図面 1
【物件名】	要約書 1
【包括委任状番号】	0101029

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

下記一般式（１）で示されることを特徴とする化合物。

【化 1】



（ $x$ ， $y$ ， $z$ は0～3の整数であり、 $x + z \geq 1$ である。

$R_3$ ， $R_{15} \sim R_{18}$ は水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基を示す。

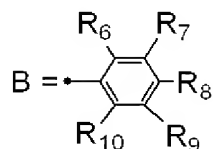
$R_1$ ， $R_2$ ， $R_4$ ， $R_5$ はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基を示し、少なくとも一つは置換基を有しても良いアリール基である。

Aは水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基または下記Bを示す。

$R_{11} \sim R_{14}$ はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基を示す。

ベンゼン環上のCHはN原子に置き換えられても良い。）

【化 2】



（ $R_6 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基を示す。）

【請求項 2】

前記Aが水素原子または前記Bであることを特徴とする請求項1に記載の化合物。

【請求項 3】

$y = z = 0$ であることを特徴とする請求項2に記載の化合物。

【請求項 4】

一対の電極間に、少なくとも一層の有機化合物を含む層を挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機化合物を含む層の少なくとも一層が請求項1～3のいずれかに記載の一般式（1）で示される化合物の少なくとも1種を含むことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 5】

前記一般式（1）で示される化合物を含む層が発光層であることを特徴とする請求項4に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 6】

前記発光層が、ホストとゲストの2つ以上の化合物からなり、該ホストが前記一般式（1）で示される化合物であることを特徴とする請求項5に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 7】

前記ゲストが燐光発光材料であることを特徴とする請求項6に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 8】

前記燐光発光材料を複数種含有することを特徴とする請求項7に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】

前記燐光発光材料が金属配位化合物であることを特徴とする請求項7または8に記載の

有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】

前記金属配位化合物がイリジウム配位化合物であることを特徴とする請求項 9 に記載の有機エレクトロルミネッセンス素子。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 化合物及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス素子

【技術分野】

【0001】

本発明は、有機化合物を用いた発光素子に関するものであり、さらに詳しくは、特定の分子構造を有する新規な化合物、及びそれを用いた有機エレクトロルミネッセンス（EL）素子に関するものである。

【背景技術】

【0002】

有機発光素子は、古くはアントラセン蒸着膜に電圧を印加して発光させた例（非特許文献1）等がある。しかし近年、無機発光素子に比べて大面積化が容易であることや、各種新材料の開発によって所望の発色が得られることや、また低電圧で駆動可能であるなどの利点や、さらには高速応答性や高効率の発光素子として、材料開発を含めて、デバイス化のための応用研究が精力的に行われている。

【0003】

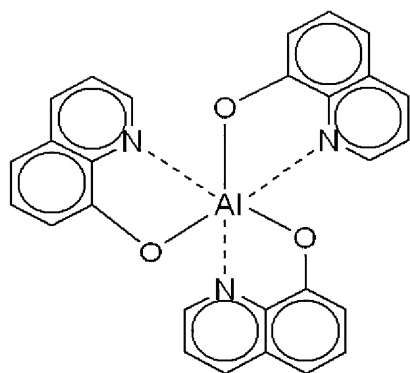
非特許文献2に詳述されているように、一般に有機EL素子は透明基板上に形成された、上下2層の電極と、この間に発光層を含む有機物層が形成された構成を持つ。

【0004】

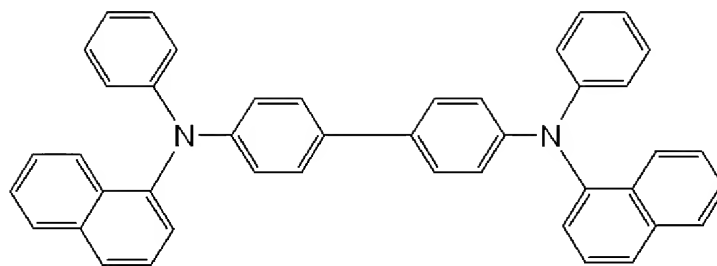
また最近では、従来の1重項励起子から基底状態に遷移するときの蛍光を利用した発光だけでなく、非特許文献3、4に代表される三重項励起子を経由した燐光発光を利用する素子の検討もなされている。これらの文献では4層構成の有機層が主に用いられている。それは、陽極側からホール輸送層、発光層、励起子拡散防止層、電子輸送層からなる。用いられている材料は、以下に示すキャリア輸送材料と燐光発光性材料  $\text{Ir}(\text{ppy})_3$  である。

【0005】

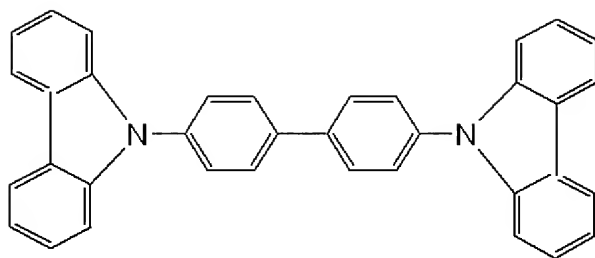
【化 1】



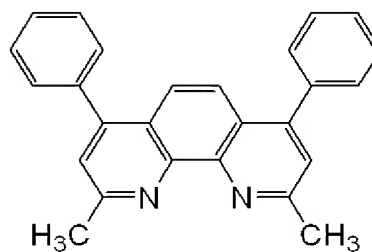
Alq<sub>3</sub>



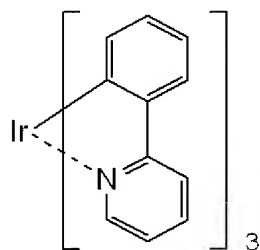
$\alpha$ -NPD



CBP



BCP



Ir(ppy)<sub>3</sub>

【0006】

また、蛍光性有機化合物の種類を変えることにより、紫外から赤外までの発光が可能であり、最近では様々な化合物の研究が活発に行われている。

【0007】

さらに、上記のような低分子材料を用いた有機発光素子の他にも、共役系高分子を用いた有機発光素子が、ケンブリッジ大学のグループにより報告されている（非特許文献5）。この報告ではポリフェニレンビニレン（PPV）を塗工系で成膜することにより、単層で発光を確認している。

【0008】

このように有機発光素子における最近の進歩は著しく、その特徴は低印加電圧で高輝度、発光波長の多様性、高速応答性、薄型、軽量の発光デバイス化が可能であることから、広汎な用途への可能性を示唆している。

【0009】

しかしながら、現状では更なる高輝度の光出力あるいは高変換効率が必要である。また、長時間の使用による経時変化や酸素を含む雰囲気気体や湿気などによる劣化等の耐久性

の面で未だ多くの問題がある。さらにはフルカラーディスプレイ等への応用を考えた場合の色純度の良い青、緑、赤の発光が必要となるが、これらの問題に関してもまだ十分でない。

#### 【0010】

また、電子輸送層や発光層などに用いる蛍光性有機化合物として、芳香族化合物や縮合多環芳香族化合物が数多く研究されているが、発光輝度や耐久性が十分に満足できるものは得られているとは言いがたい。

#### 【0011】

本発明に関連するフルオレン化合物の有機ELへの応用の特許文献として特許文献1～3が挙げられるが、分子構造式にフルオレン環とフェニレン環を一直線上に含む部分構造を有することを特徴とする本発明の有機化合物の開示はない。また、レーザー色素への応用としてフルオレン化合物（非特許文献6）が報告されている。

#### 【0012】

【特許文献1】特開2004-43349号公報

【特許文献2】国際公開第99/54385号パンフレット

【特許文献3】特開2003-229273号公報

【非特許文献1】Thin Solid Films, 94 (1982) 171

【非特許文献2】Macromol. Symp. 125, 1~48 (1997)

【非特許文献3】Improved energy transfer in electrophosphorescent device (D. F. O'Brien 他, Applied Physics Letters Vol 74, No 3 p 422 (1999))

【非特許文献4】Very high-efficiency green organic light-emitting devices based on electrophosphorescence (M. A. Baldo 他, Applied Physics Letters Vol 75, No 1 p 4 (1999))

【非特許文献5】Nature, 347, 539 (1990)

【非特許文献6】Journal of Fluorescence, Vol. 5, No. 3, 295 (1995)

#### 【発明の開示】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0013】

有機EL素子をディスプレイ等の表示装置に応用するためには、高効率で高輝度な光出力を有すると同時に高耐久性を十分に確保する必要がある。しかしながら、これらの問題に関して、まだ十分とは言えない。

#### 【0014】

本発明の目的は、有機EL素子用化合物として好適に使用し得る新規な化合物を提供することにある。また、該化合物を用いた高効率で高輝度な光出力を有する有機EL素子を提供することにある。また、高耐久性の有機EL素子を提供することにある。さらには製造が容易でかつ比較的安価に作成可能な有機EL素子を提供することにある。

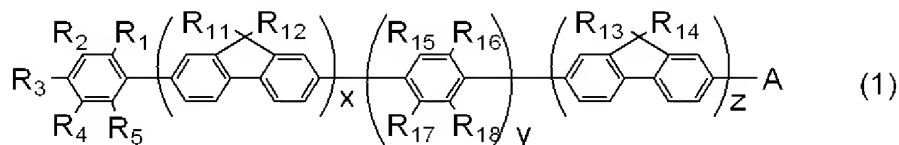
#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0015】

即ち、本発明の化合物は、下記一般式(1)で示されることを特徴とする。

#### 【0016】

#### 【化2】





【0017】

( $x, y, z$  は 0 ～ 3 の整数であり、 $x + z \geq 1$  である。

【0018】

$R_3, R_{15} \sim R_{18}$  は水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基を示す。

【0019】

$R_1, R_2, R_4, R_5$  はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基を示し、少なくとも一つは置換基を有しても良いアリール基である。

【0020】

A は水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基または下記 B を示す。

【0021】

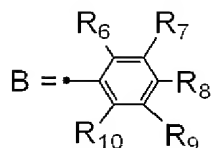
$R_{11} \sim R_{14}$  はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基を示す。

【0022】

ベンゼン環上の CH は N 原子に置き換えられても良い。)

【0023】

【化3】



【0024】

( $R_6 \sim R_{10}$  は、それぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基を示す。)

【0025】

また、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、一対の電極間に、少なくとも一層の有機化合物を含む層を挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該有機化合物を含む層の少なくとも一層が、上記一般式(1)で示される化合物の少なくとも1種を含むことを特徴とする。

【発明の効果】

【0026】

本発明の化合物は高いガラス転移温度を有する。また、フェニル環、フルオレン環からなる骨格を分子の主軸(以下“分子の主軸”とする。)としたとき、分子の主軸方向から側方に伸びたアリール置換基により結晶性を低下させることで、アモルファス膜状の安定化が期待できる。本発明の化合物は、直鎖または分岐の長鎖アルキル基を付与することで結晶性を低下させたものよりも、導電性の観点において有利であると期待できる。さらに、分子の主軸方向から側方にアリール置換基を持たない一直線な分子構造を持つ化合物よりも有機溶媒に対する溶解性を増す事が期待でき、種々の精製法をより適用しやすくなり得ると期待出来る。

【0027】

また、本発明の化合物を発光層のホストに用いた本発明の発光素子は、高効率発光のみならず、従来用いられている化合物よりも長い期間高輝度を保ち、優れた素子である。また、同じ電圧値での電流値が大きく、低電圧駆動が期待できる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0028】

まず、本発明の化合物について説明する。

【0029】

発光層が、キャリア輸送性のホスト材料とゲストからなる場合、発光にいたる主な過程は、以下のいくつかの過程からなる。

1. 発光層内での電子・ホール輸送。
2. ホストの励起子生成。
3. ホスト分子間の励起エネルギー伝達。
4. ホストからゲストへの励起エネルギー移動。

【0030】

それぞれの過程における所望のエネルギー移動や、発光はさまざまな失活過程と競争でおこる。

【0031】

EL素子の発光効率を高めるためには、発光中心材料そのものの発光量子収率が高いことは言うまでもない。しかしながら、ホストーホスト間、あるいはホストーゲスト間のエネルギー移動が如何に効率的にできるかも大きな問題となる。また、通電による発光劣化は今のところ原因は明らかではないが、少なくとも発光中心材料そのもの、または、その周辺分子による発光材料の環境変化に関連したものと想定される。

【0032】

そこで本発明者らは種々の検討を行い、前記一般式(1)で表される化合物を用いた素子、特に発光層のホストに用いた素子が高効率発光し、長い期間高輝度を保ち、通電劣化が小さいことを見出した。

【0033】

通電による発光劣化の原因の一つとして、発光層の薄膜形状の劣化による発光劣化が考えられる。この薄膜形状の劣化は、駆動環境の温度、素子駆動時の発熱等による有機薄膜の結晶化に起因すると考えられている。これは、材料のガラス転移温度の低さや、ホスト化合物の結晶性の高さに由来すると考えられ、有機EL材料は高いガラス転移温度と、アモルファス膜状態の高い安定性を有する事が望まれている。

【0034】

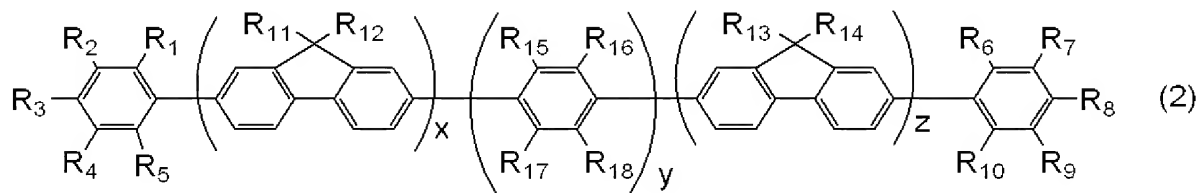
本発明の化合物は、高いガラス転移温度を有し、分子の主軸方向から側方に伸びたアリール置換基により、結晶性を低下させることで、アモルファス膜状態が安定化され、有機EL素子の高耐久化を期待する事が出来る。

【0035】

本発明の化合物は、上記一般式(1)で表されるが、これらのうちでも、Aが水素原子またはBである化合物、具体的には下記一般式(2)または(3)で表される化合物が好ましく、 $y = z = 0$ である化合物、具体的には下記一般式(4)または(5)で表される化合物がより好ましい。

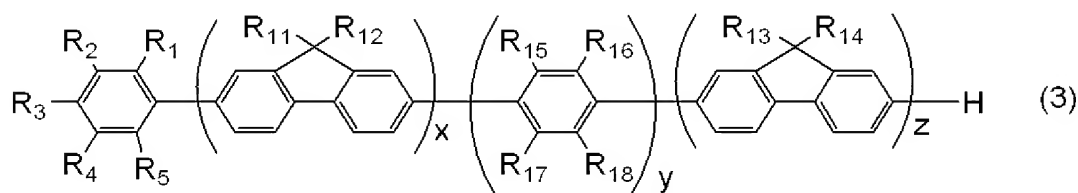
【0036】

【化4】



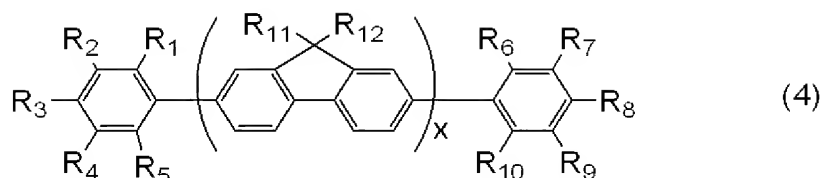
【0037】

【化5】



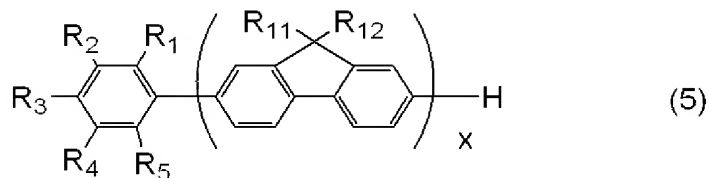
【0038】

【化6】



【0039】

【化7】



【0040】

一般式(1)において、フルオレン基の9位(R<sub>11</sub>~R<sub>14</sub>)は、水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基であり、好ましくは直鎖状または分岐状のアルキル基、より好ましくはメチル基、エチル基、さらに好ましくはメチル基である。フルオレン基の9位がメチル基の場合が、より高いガラス転移温度を有し、耐熱性が高いため、有機EL素子の高耐久化を期待する事が出来る。また、高効率発光の素子を得る為には、駆動電圧を低くする必要があり、その為には、ホストが電荷の導電性を有することが重要になる。フルオレン基の9位がアルキル鎖のとき、アルキル鎖を長くすると、電荷導電性が低下すると考えられ、フルオレン基の9位がメチル基の場合が、より高い電荷導電性を有し、素子の駆動電圧を低下する事が出来、有機EL素子の高効率化を期待する事が出来る。

【0041】

R<sub>15</sub>~R<sub>18</sub>は、水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基であり、同様にガラス転移点、電荷導電性の観点から、水素原子またはメチル基が好ましい。

【0042】

R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>~R<sub>10</sub>は、水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基であり、R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>4</sub>, R<sub>5</sub>のうちの少なくとも一つは置換基を有しても良いアリール基である。

【0043】

アリール基としては、好ましくはフェニル基、ナフチル基、アントラニル基、フルオレニル基、ピレニル基、フェナントレニル基、クリセニル基、フルオランテニル基、トリフェニレニル基、ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジル基、ピリダジニル基、キノリニル基、イソキノリニル基、フェナントリジニル基、アルリジニル基、ナフチリジニル基、キノキサリニル基、キナゾリニル基、シンノリニル基、フタラジニル基、フェナントロリル基、フェナジニル基である。より好ましくは、フェニル基、ナフチル基、フルオレニル基、ピリジル基、ピラジニル基、ピリミジル基、キノリニル基、イソキノリニル基、キノキサリニル基、フェナントロリル基である。さらに好ましくは、フェニル基、ナフチル基、フルオレニル基である。また、これらアリール基2つ以上が任意の位置で結合手を作り組み合わせることができるアリール基でも良い。アリール基の置換基としては、好ましくは直鎖状または分岐状のアルキル基であり、より好ましくはメチル基、エチル基、さらに好ましくは、電荷導電性の観点からメチル基である。尚、電荷導電性の観点からは、無置換の場合も好ましい。

【0044】

アルキル基としては、好ましくはメチル基、エチル基、より好ましくはメチル基である。

【0045】

分子の主軸方向から側方に伸びたアリール置換基を付与することにより、分子形状が嵩

高くなるため、結晶性を低下させ、アモルファス状態の安定性が向上すると期待できる。また、アリール基は $\pi\pi$ 相互作用による分子間相互作用が期待できるため、ガラス転移点の低下を抑えつつ、アモルファス性を高めることが期待出来る。

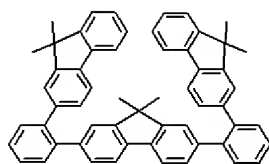
【 0 0 4 6 】

また、通電による発光劣化の原因として、不純物の混入が挙げられる。高分子化合物を素子に用いた場合は、高分子中の不純物の除去が難しいため、素子に不純物が混入しやすく、素子の短寿命化を引き起こす。本発明の化合物は、単一化合物であるため、再結晶法、カラムクロマトグラフィー法、昇華精製法等の精製法を適宜用いる事により、不純物の除去が容易であり、有機EL素子の高耐久化を期待する事が出来る。

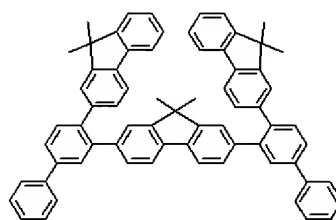
【 0 0 4 7 】

以下、本発明の化合物の具体的な構造式を下記に示す。但し、これらは、代表例を例示しただけで、本発明は、これに限定されるものではない。

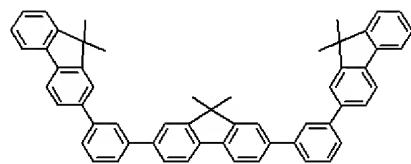
【 0 0 4 8 】



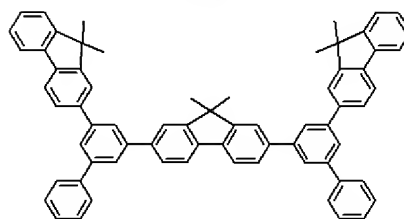
X-1



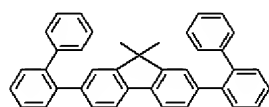
X-2



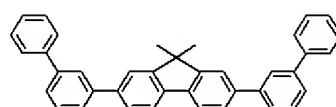
X-3



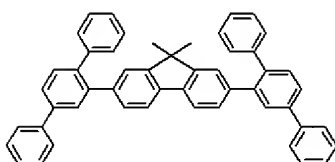
X-4



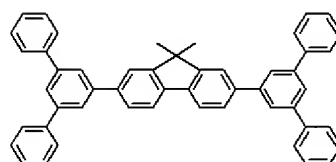
X-5



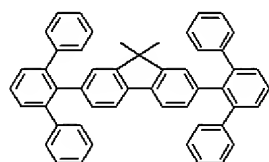
X-6



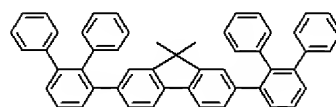
X-7



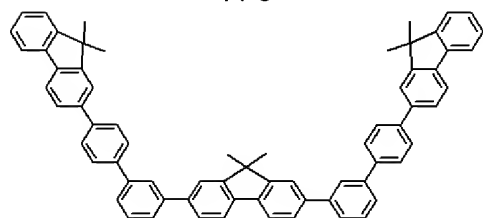
X-8



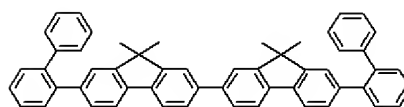
X-9



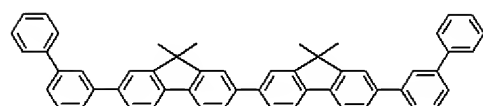
X-10



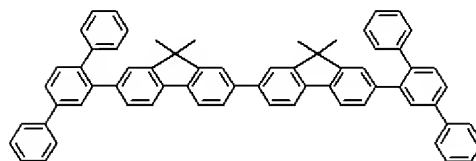
X-11



X-12

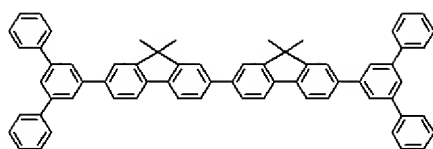


X-13

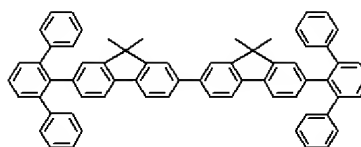


X-14

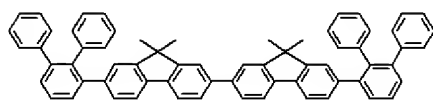
【化 9】



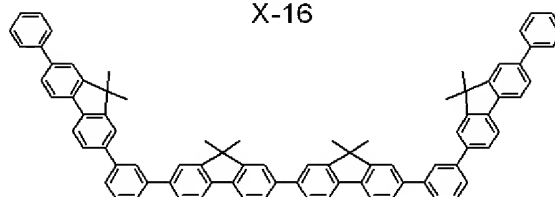
X-15



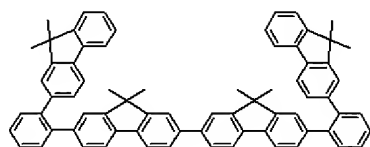
X-16



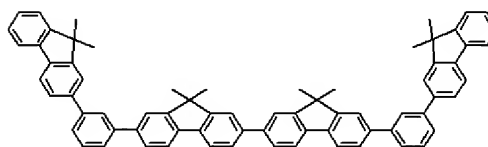
X-17



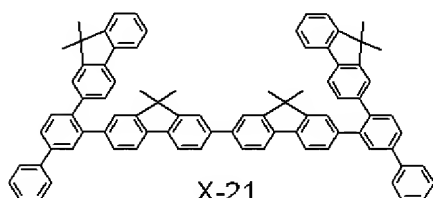
X-18



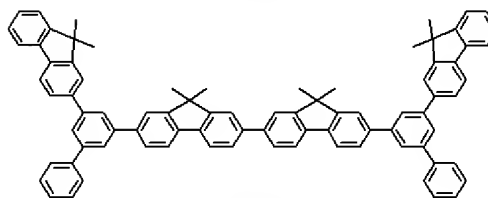
X-19



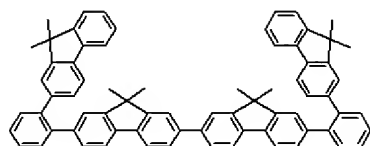
X-20



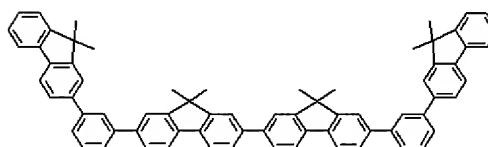
X-21



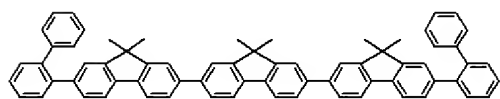
X-22



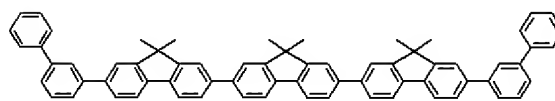
X-23



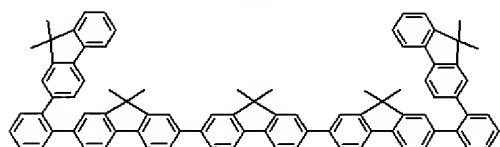
X-24



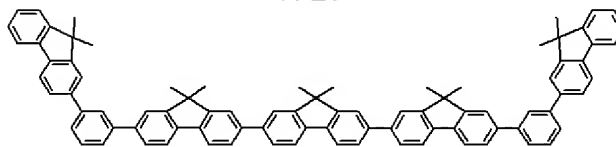
X-25



X-26



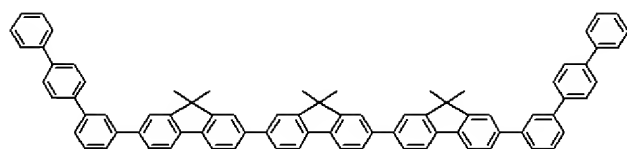
X-27



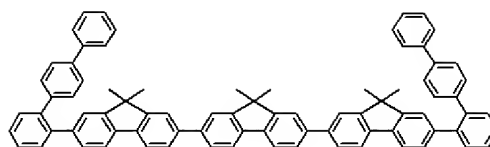
X-28

【 0 0 5 0 】

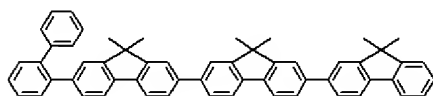
【化 1 0】



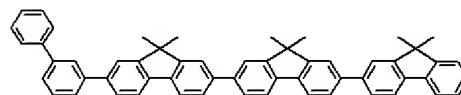
X-29



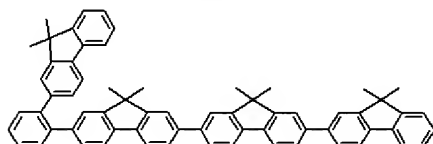
X-30



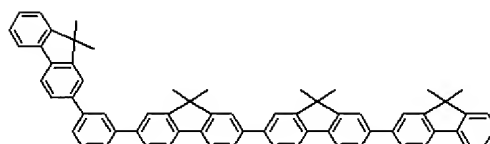
X-31



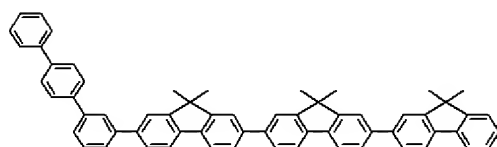
X-32



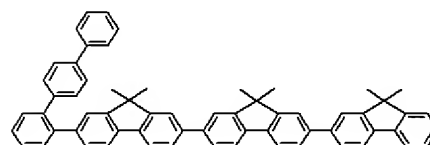
X-33



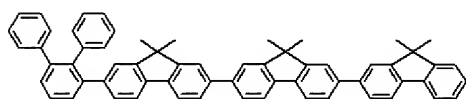
X-34



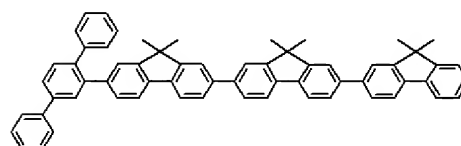
X-35



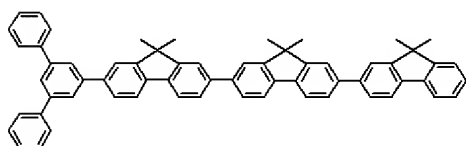
X-36



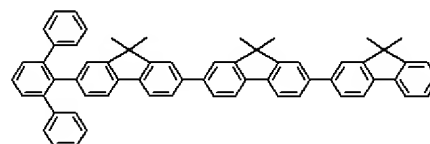
X-37



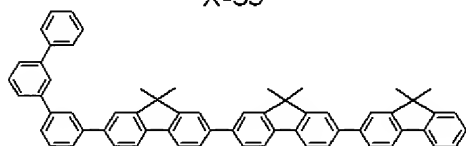
X-38



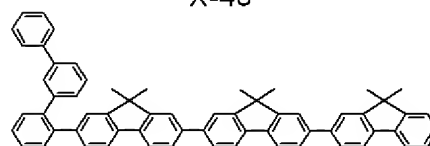
X-39



X-40



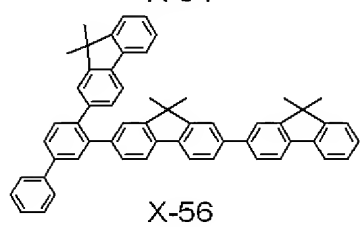
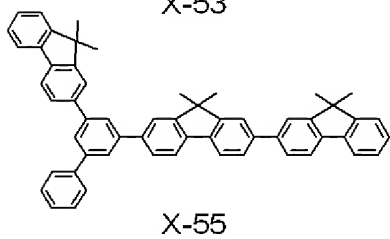
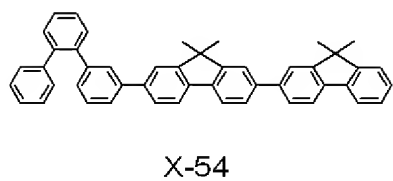
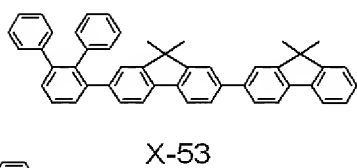
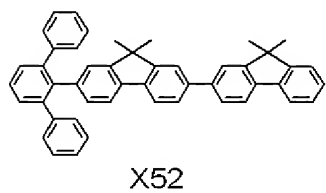
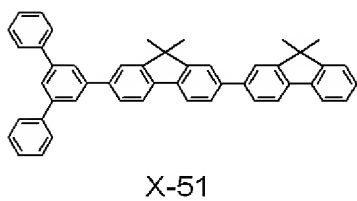
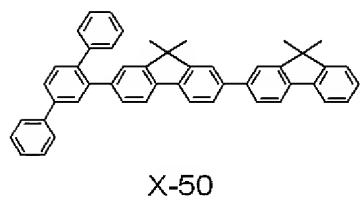
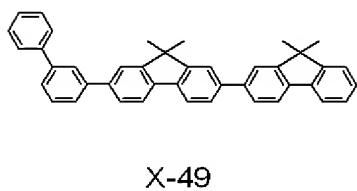
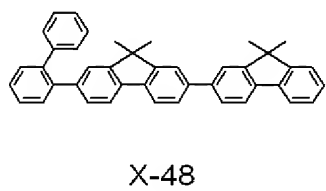
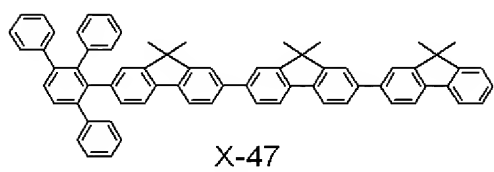
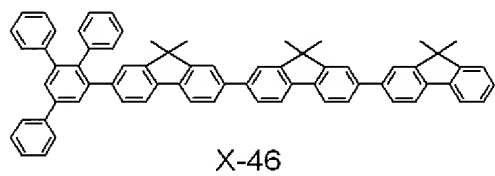
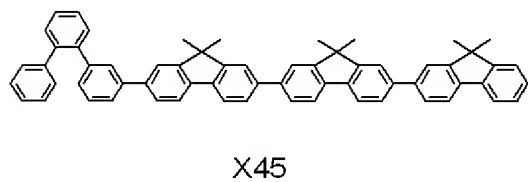
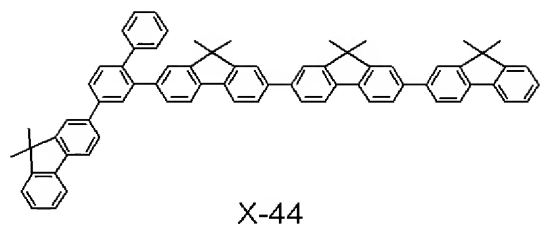
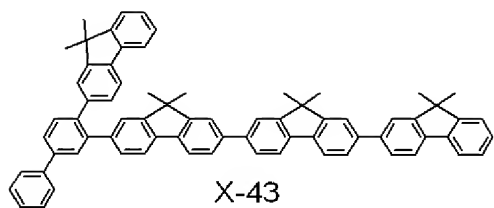
X-41



X-42

【 0 0 5 1】

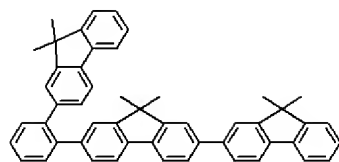
【化 1 1】



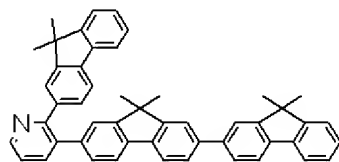
【 0 0 5 2】



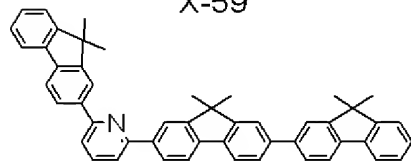
【化 1 2】



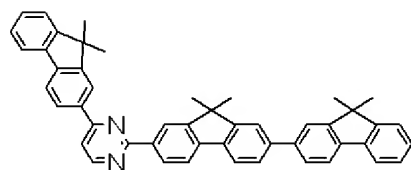
X-57



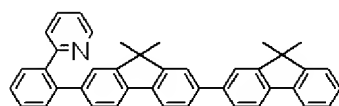
X-59



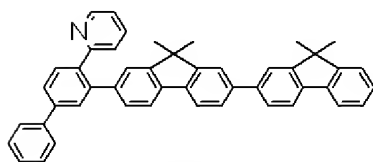
X-61



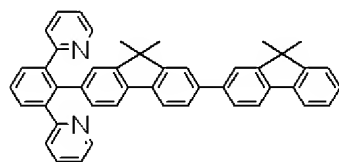
X-63



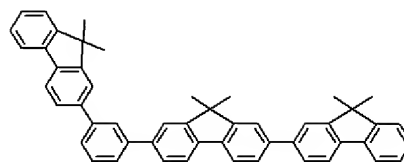
X-65



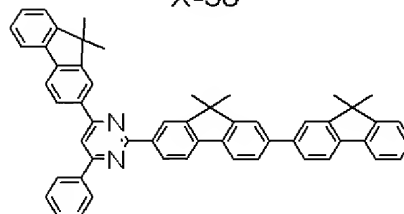
X-67



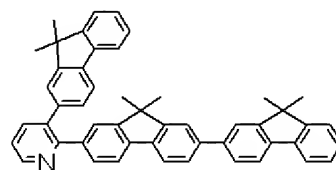
X-69



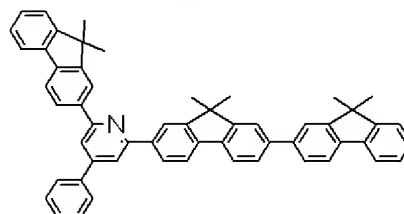
X-58



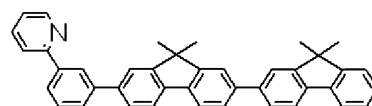
X-60



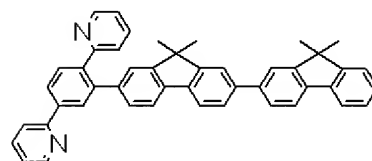
X-62



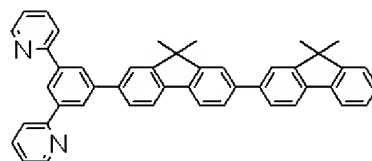
X-64



X-66



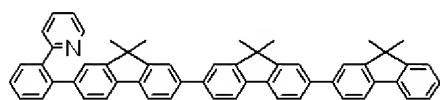
X-68



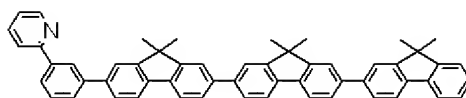
X-70

【 0 0 5 3 】

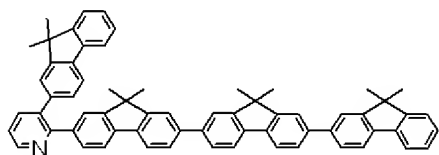
【化 1 3】



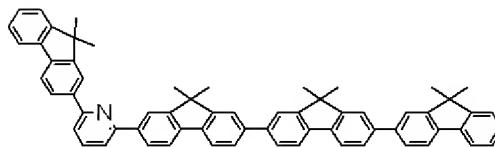
X-71



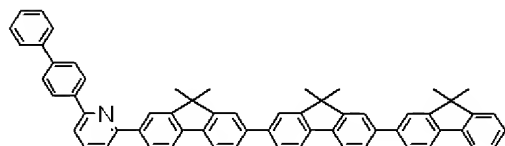
X-72



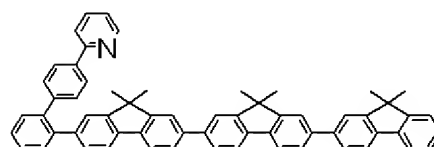
X-73



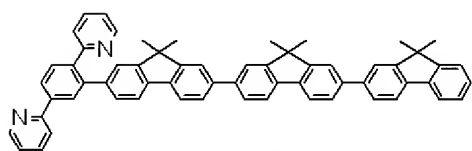
X-74



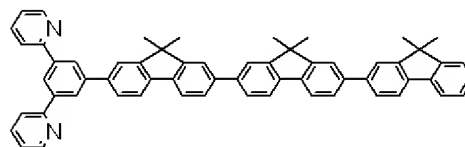
X-75



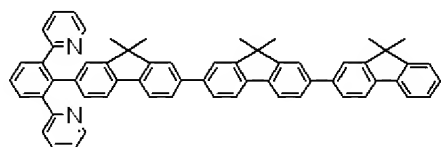
X-76



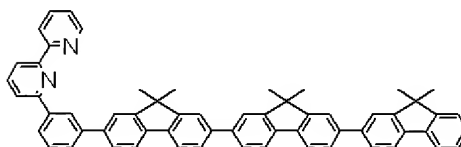
X-77



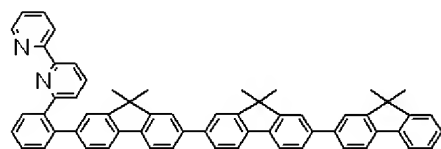
X-78



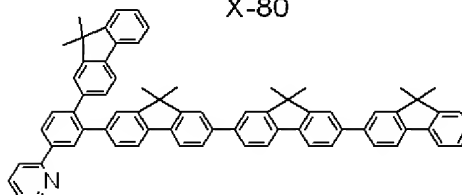
X-79



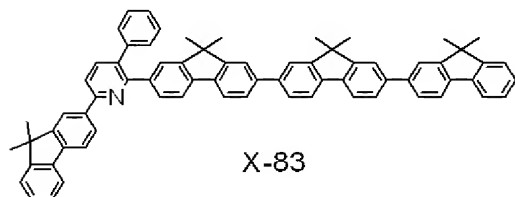
X-80



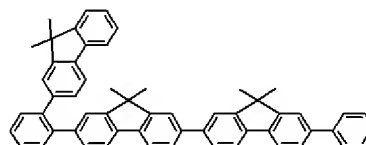
X-81



X-82



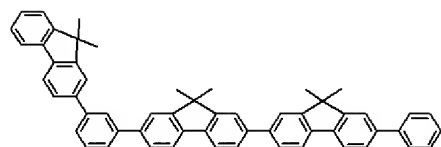
X-83



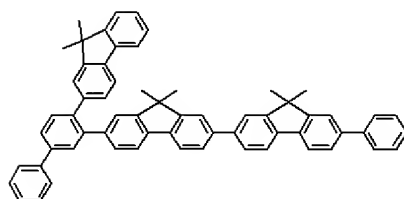
X-84

【 0 0 5 4 】

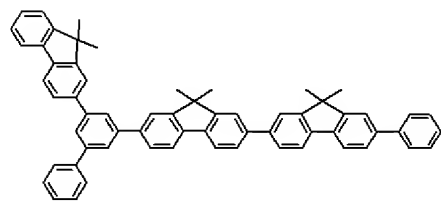
【化 1 4】



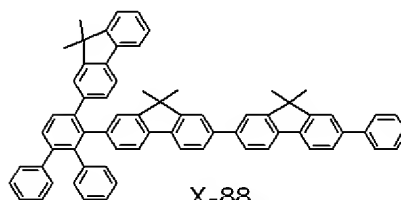
X-85



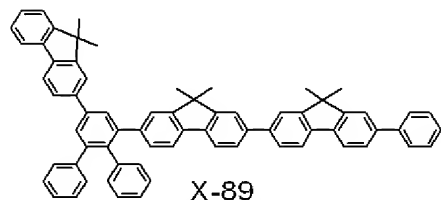
X-86



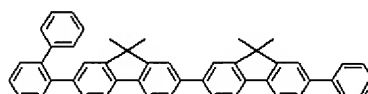
X-87



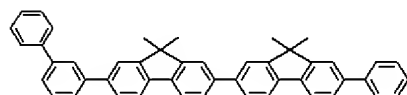
X-88



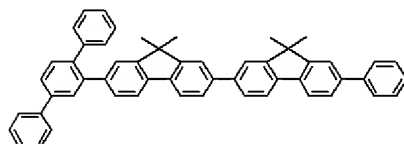
X-89



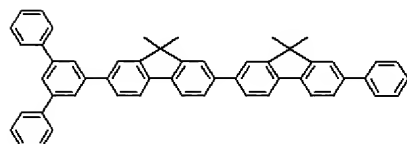
X-90



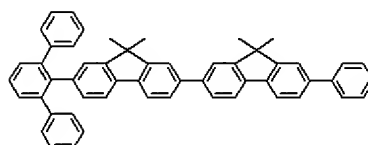
X-91



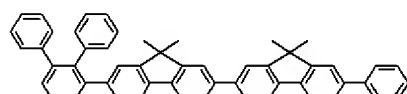
X-92



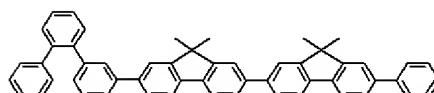
X-93



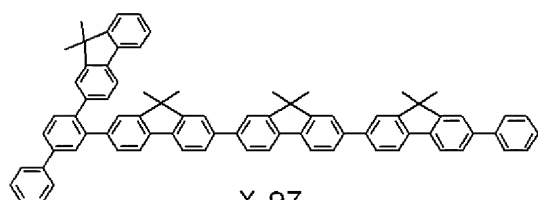
X-94



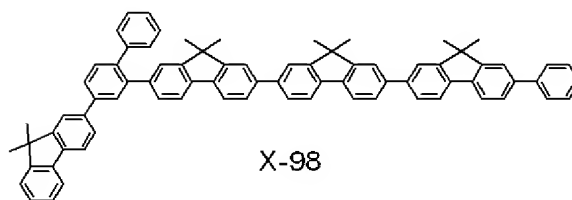
X-95



X-96



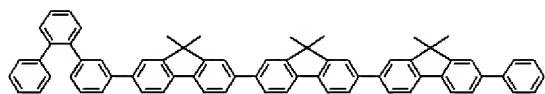
X-97



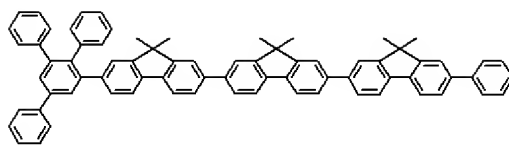
X-98

【 0 0 5 5】

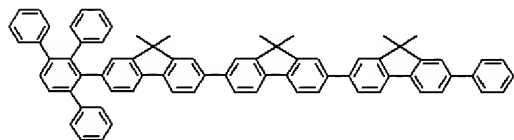
【化 1 5】



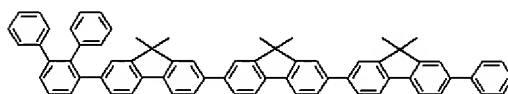
X-99



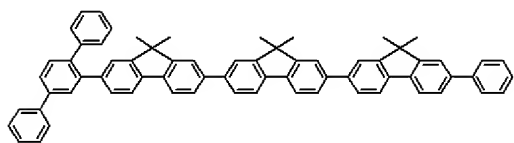
X-100



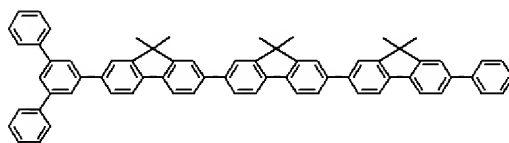
X-101



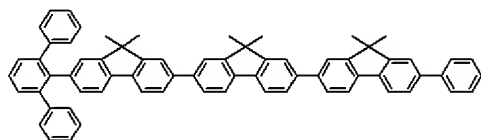
X-102



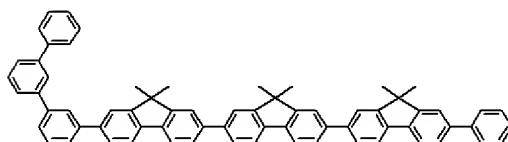
X-103



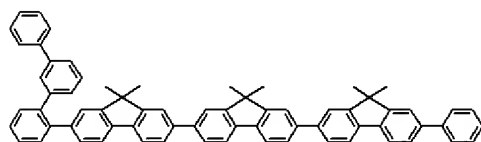
X-104



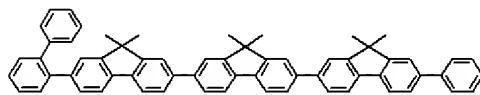
X-105



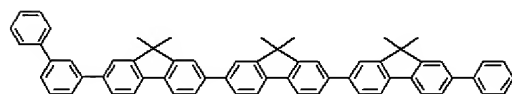
X-106



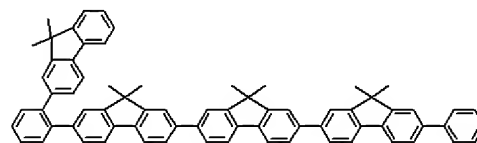
X-107



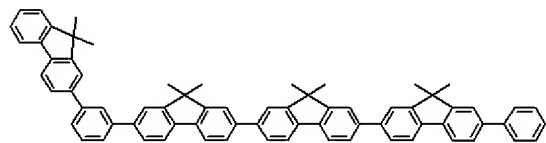
X-108



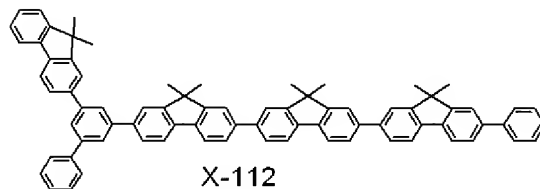
X-109



X-110

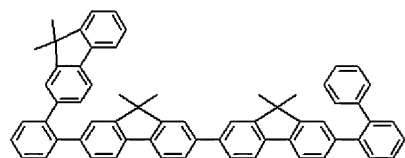


X-111

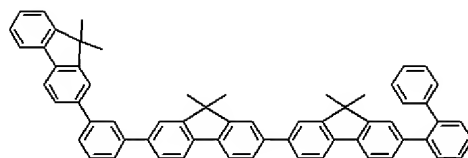


X-112

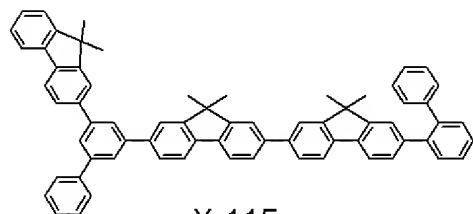
【 0 0 5 6 】



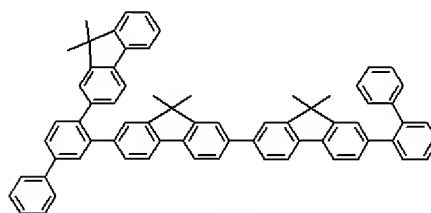
X-113



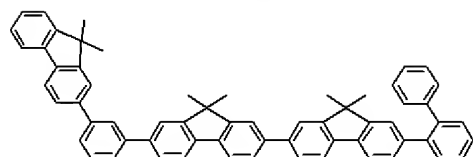
X-114



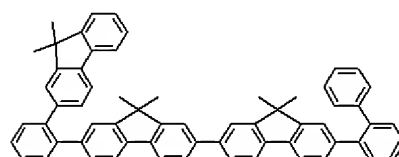
X-115



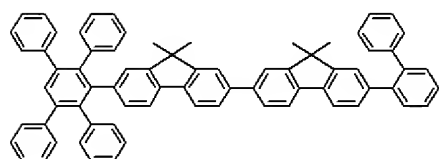
X-116



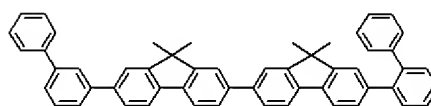
X-117



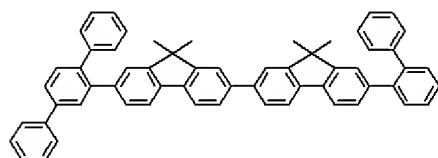
X-118



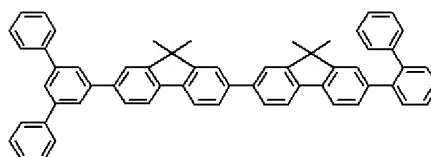
X-119



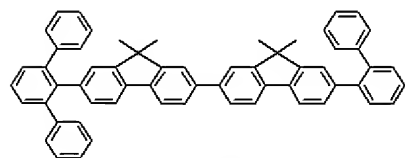
X-120



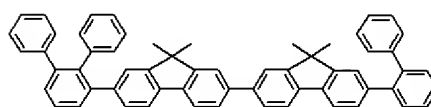
X-121



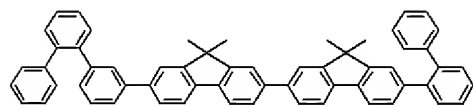
X-122



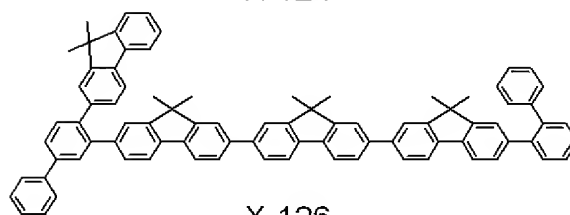
X-123



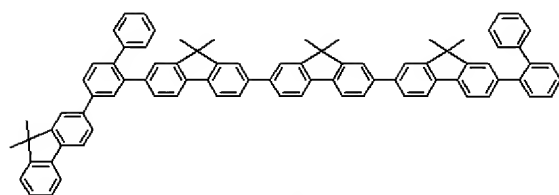
X-124



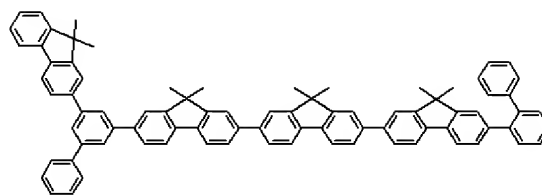
X-125



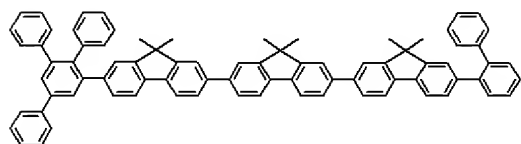
X-126



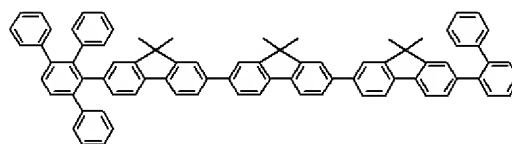
X-127



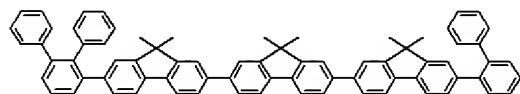
X-128



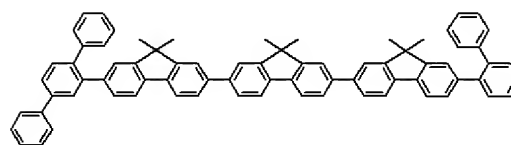
X-129



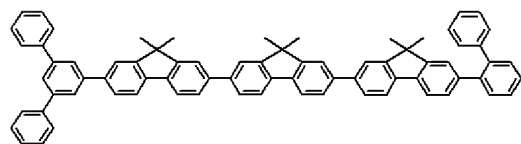
X-130



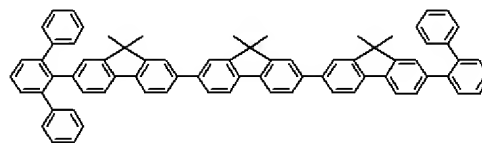
X-131



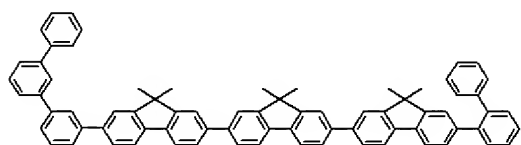
X-132



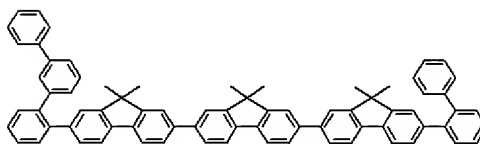
X-133



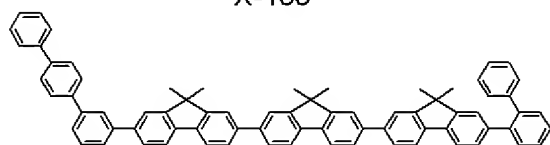
X-134



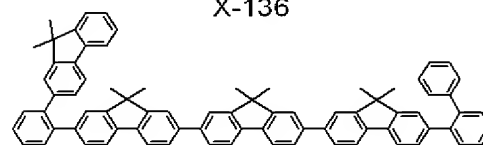
X-135



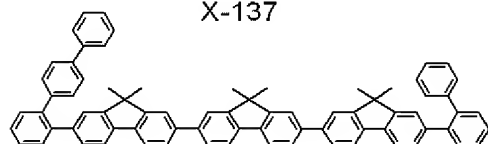
X-136



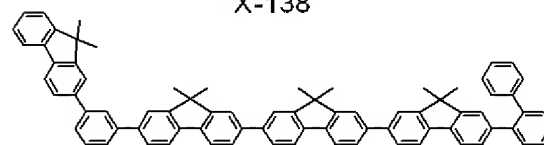
X-137



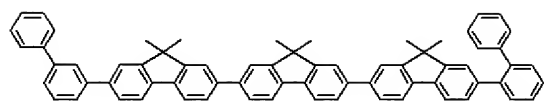
X-138



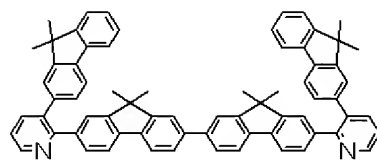
X-139



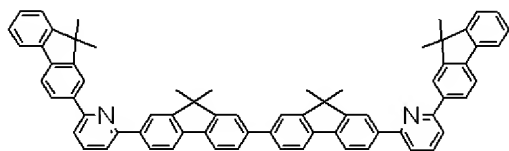
X-140



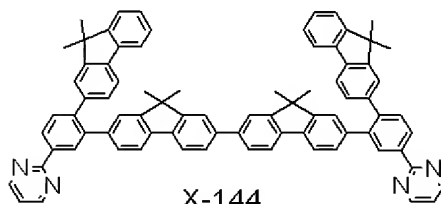
X-141



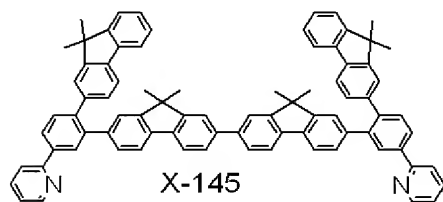
X-142



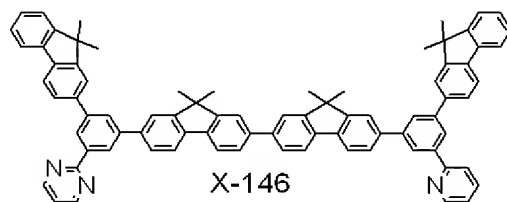
X-143



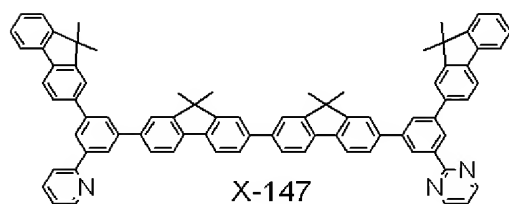
X-144



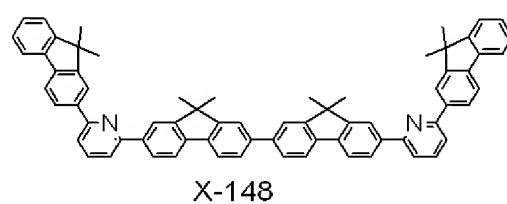
X-145



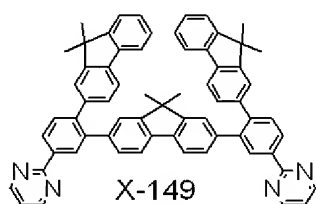
X-146



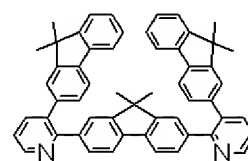
X-147



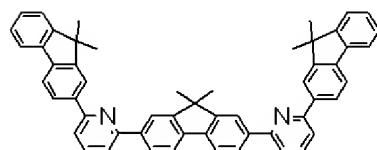
X-148



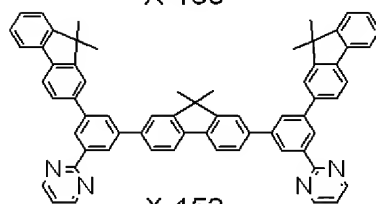
X-149



X-150

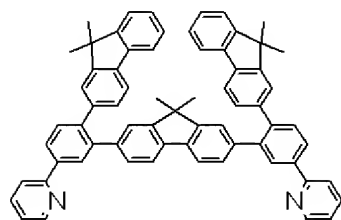


X-151

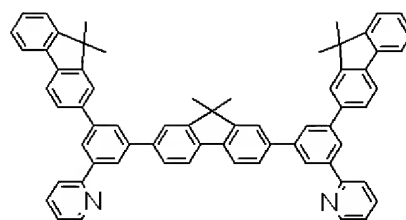


X-152

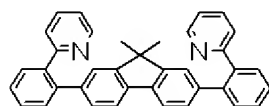
【化 1 9】



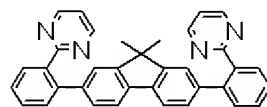
X-153



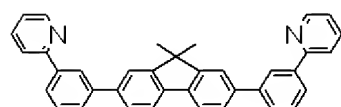
X-154



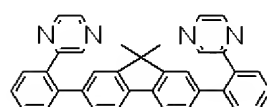
X-155



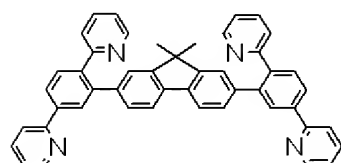
X-156



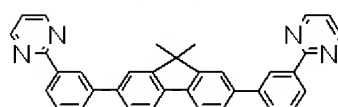
X-157



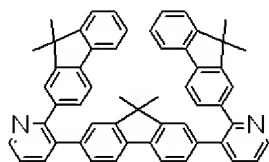
X-158



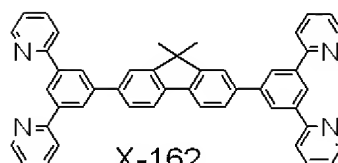
X-159



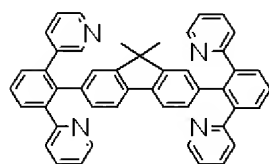
X-160



X-161

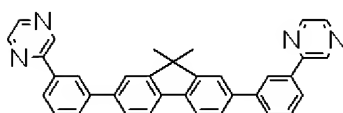


X-162



X-163

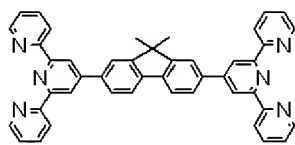
【 0 0 6 0 】



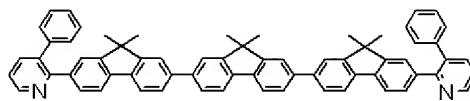
X-164



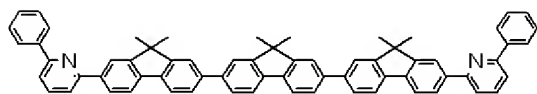
【化 2 0】



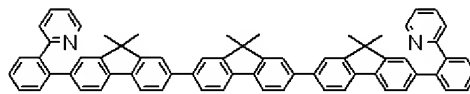
X-165



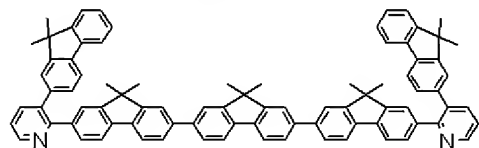
X-166



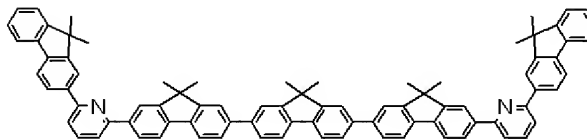
X-167



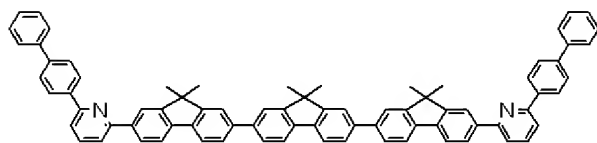
X-168



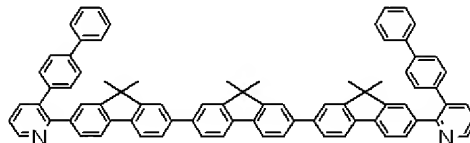
X-169



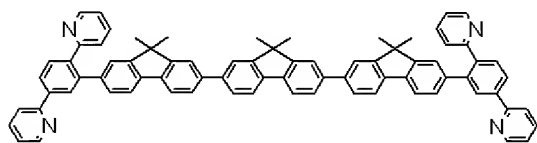
X-170



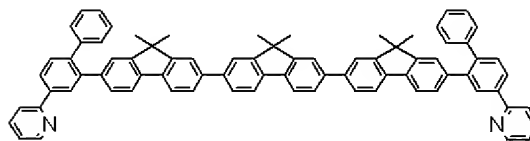
X-171



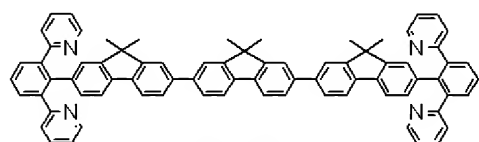
X-172



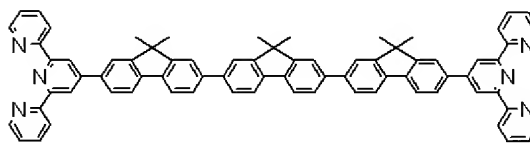
X-173



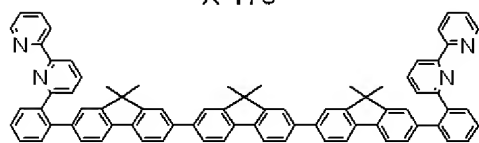
X-174



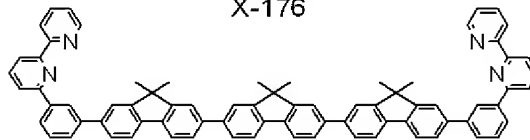
X-175



X-176



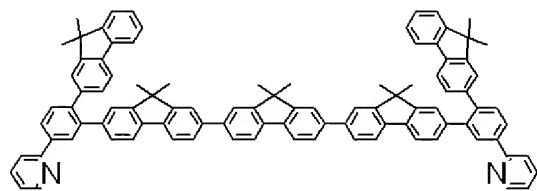
X-177



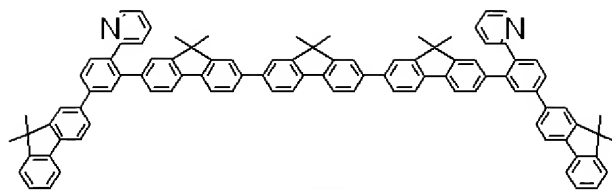
X-178

【 0 0 6 1】

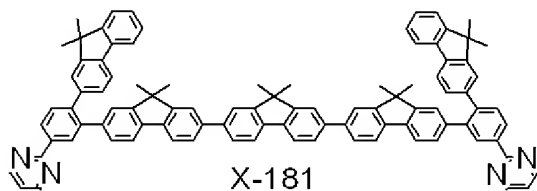
【化 2 1】



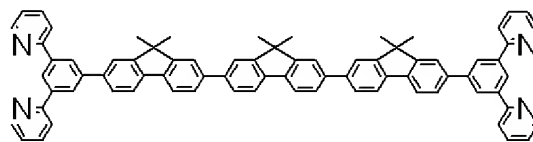
X-179



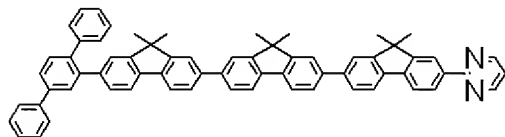
X-180



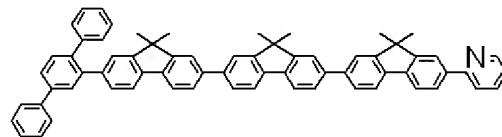
X-181



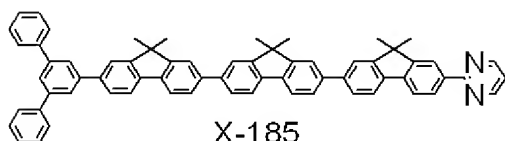
X-182



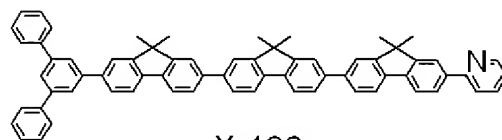
X-183



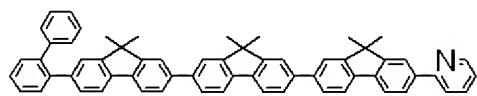
X-184



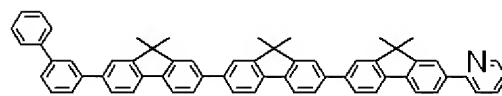
X-185



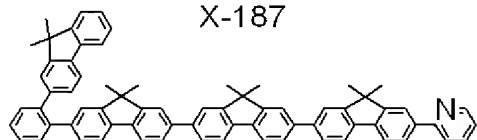
X-186



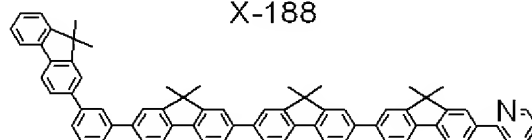
X-187



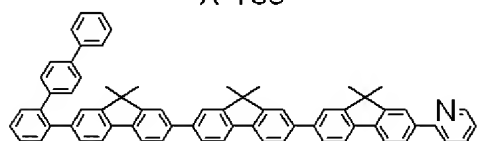
X-188



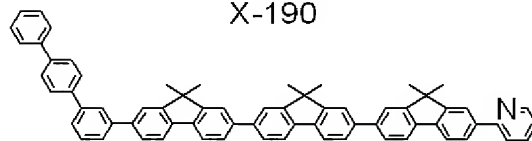
X-189



X-190



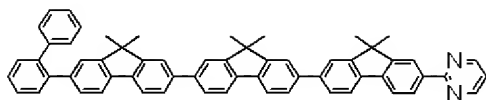
X-191



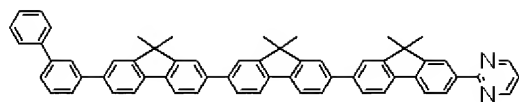
X-192

【 0 0 6 2】

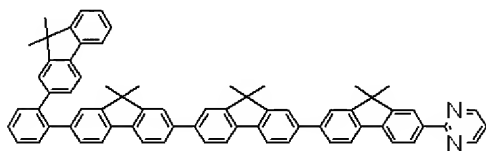
【化 2 2】



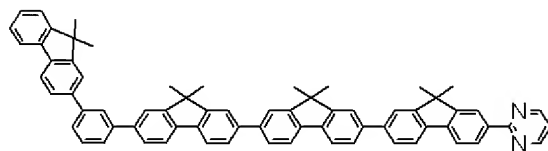
X-193



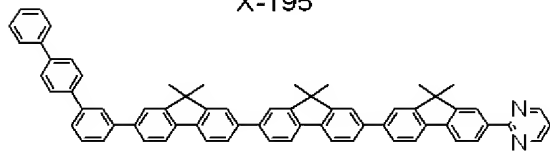
X-194



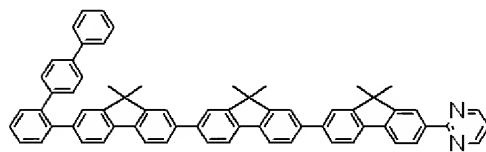
X-195



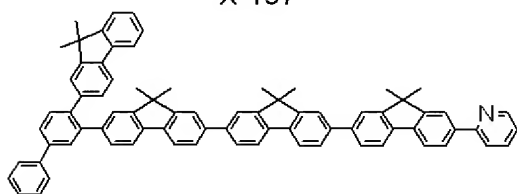
X-196



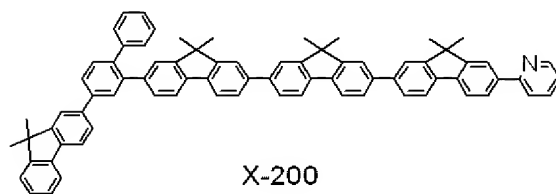
X-197



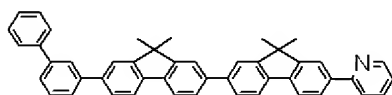
X-198



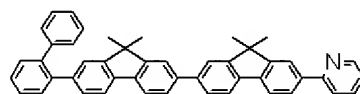
X-199



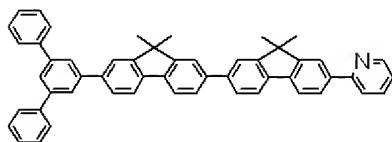
X-200



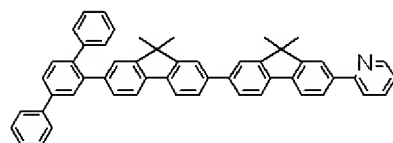
X-201



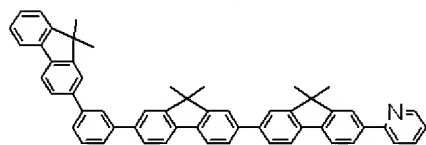
X-202



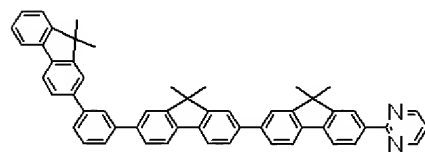
X-203



X-204



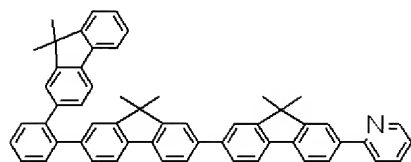
X-205



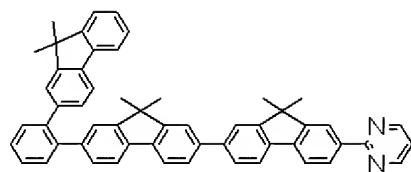
X-206

【 0 0 6 3 】

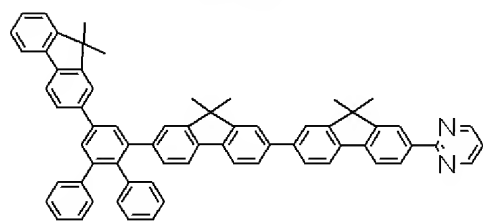
【化 2 3】



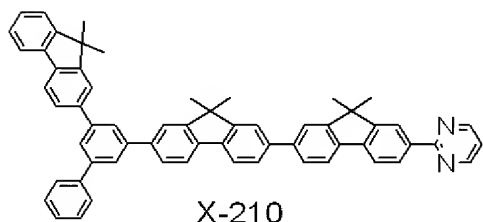
X-207



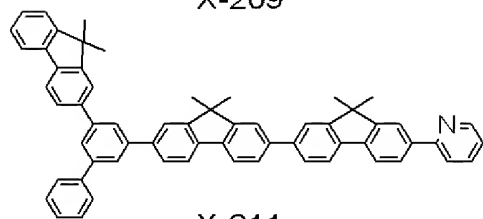
X-208



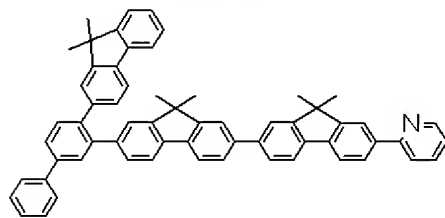
X-209



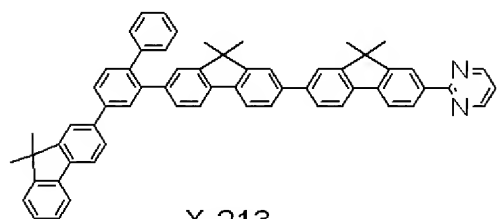
X-210



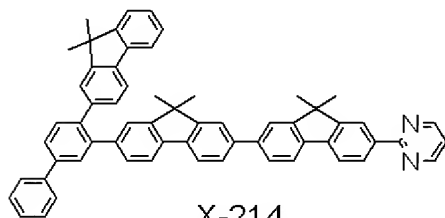
X-211



X-212



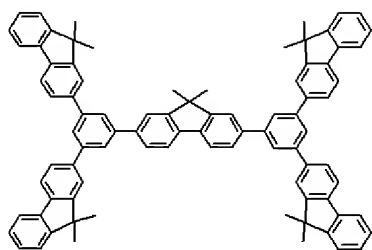
X-213



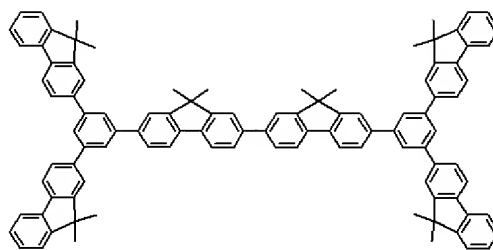
X-214

【 0 0 6 4 】

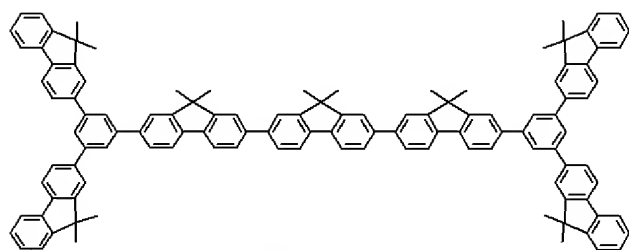
【化 2 4】



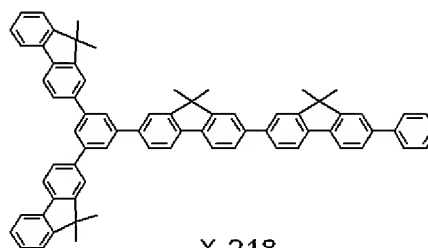
X-215



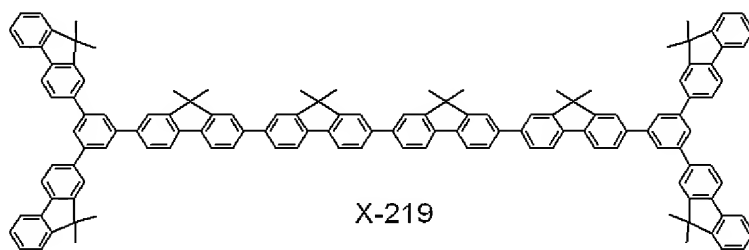
X-216



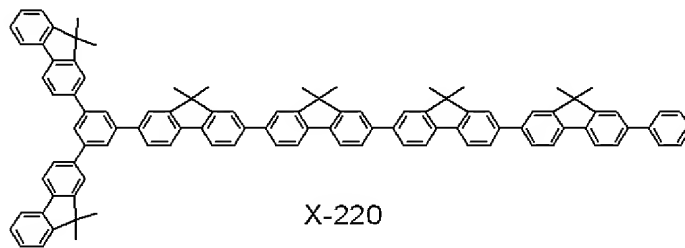
X-217



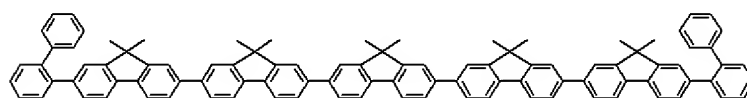
X-218



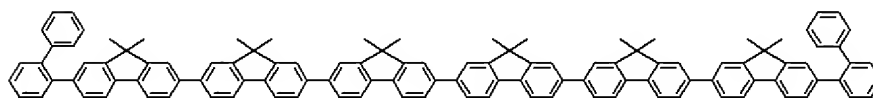
X-219



X-220



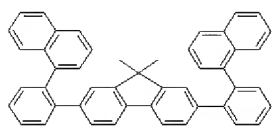
X-221



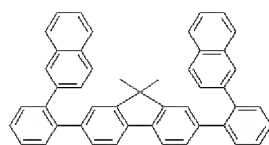
X-222

【 0 0 6 5 】

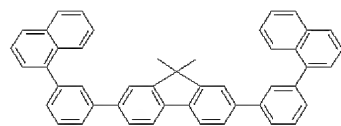
【化 2 5】



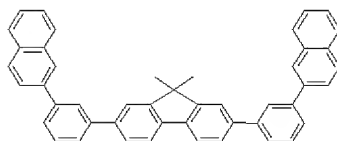
X-223



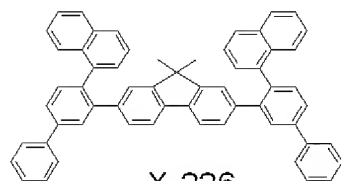
X-224



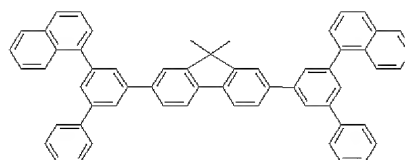
X-225



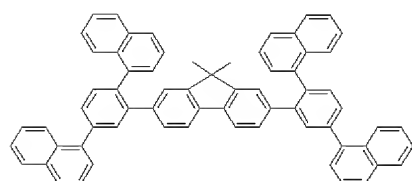
X-226



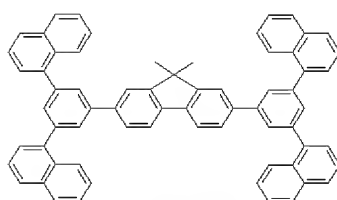
X-227



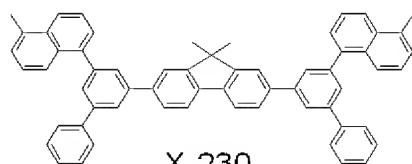
X-228



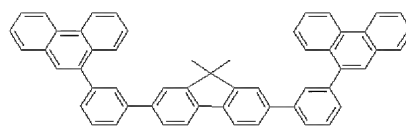
X-229



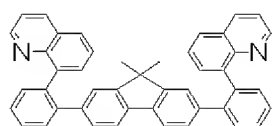
X-230



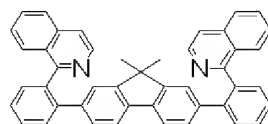
X-231



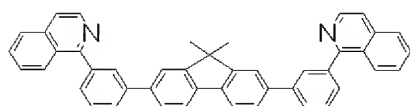
X-232



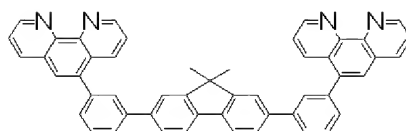
X-233



X-234



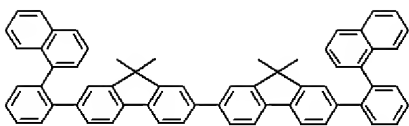
X-235



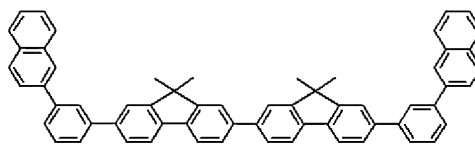
X-236

【 0 0 6 6 】

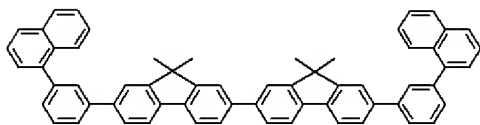
【化 2 6】



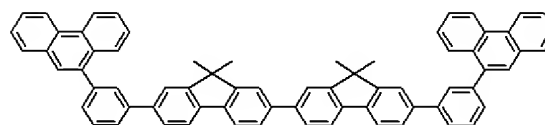
X-236



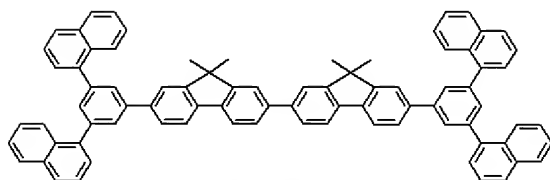
X-237



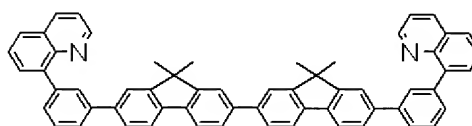
X-238



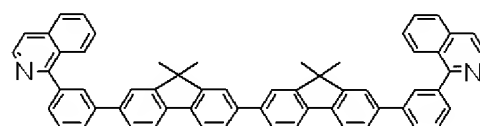
X-239



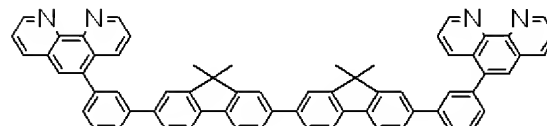
X-240



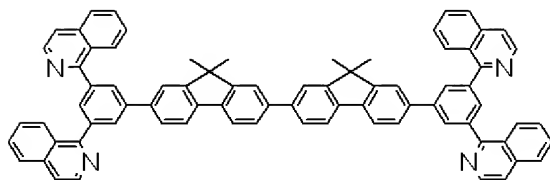
X-241



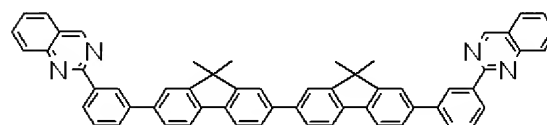
X-242



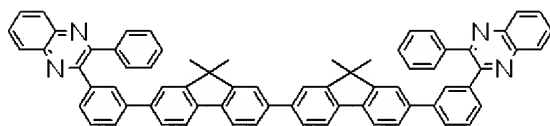
X-243



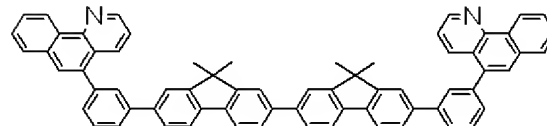
X-244



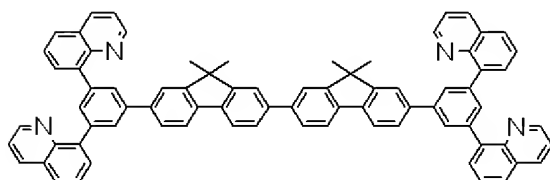
X-245



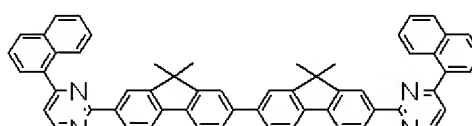
X-246



X-248



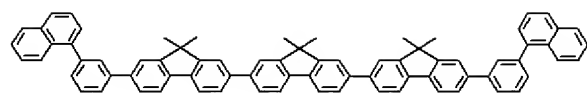
X-249



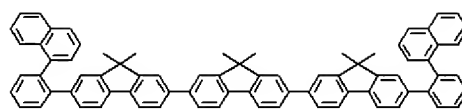
X-250

【 0 0 6 7】

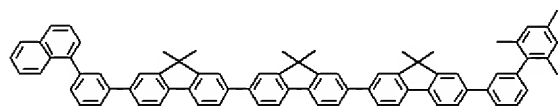
【化 2 7】



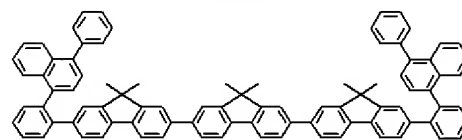
X-251



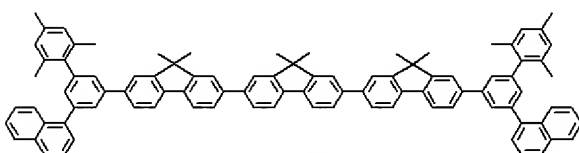
X-252



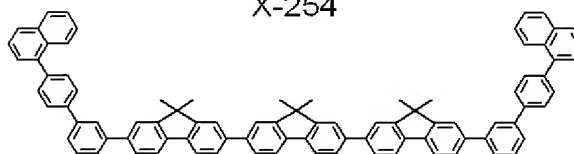
X-253



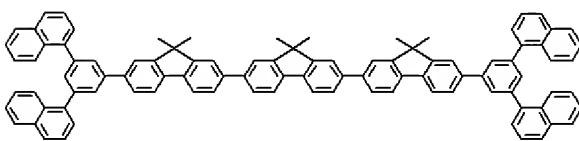
X-254



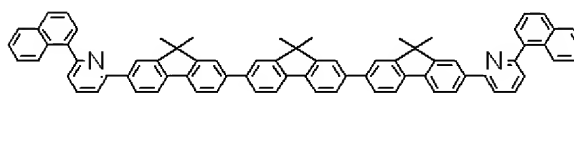
X-255



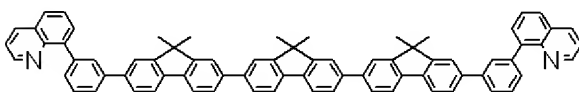
X-256



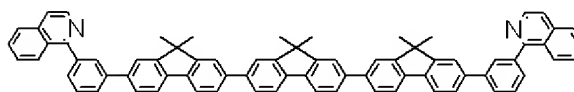
X-257



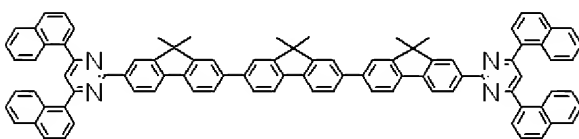
X-258



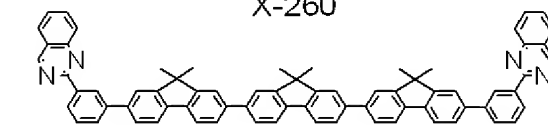
X-259



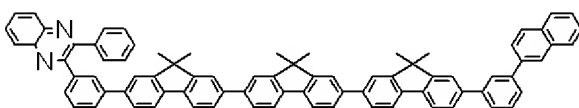
X-260



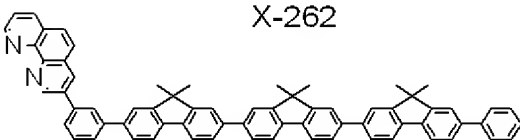
X-261



X-262



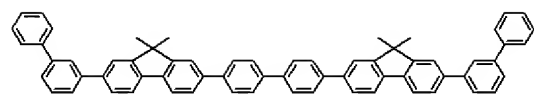
X-263



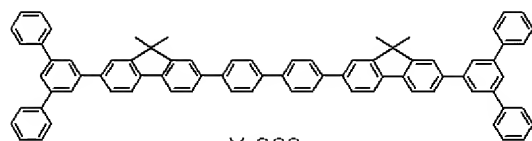
X-264

【 0 0 6 8 】

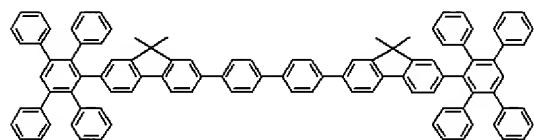




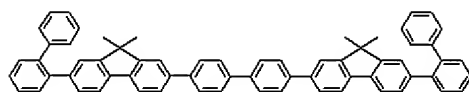
X-265



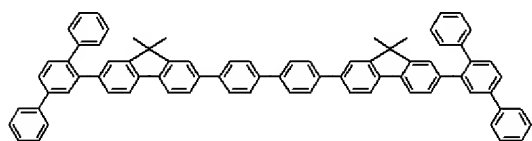
X-266



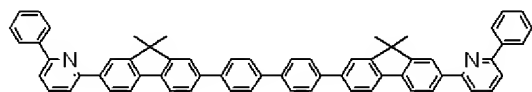
X-267



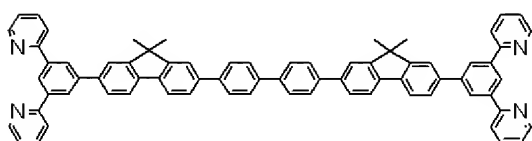
X-268



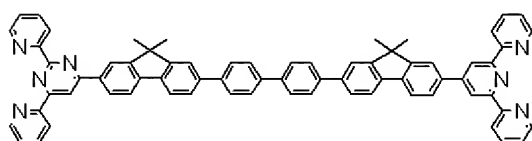
X-269



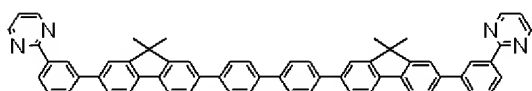
X-270



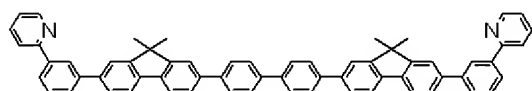
X-271



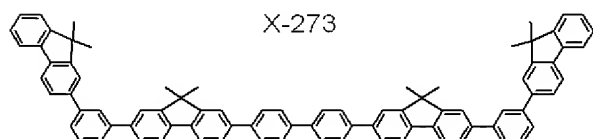
X-272



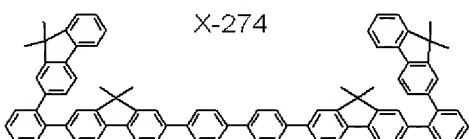
X-273



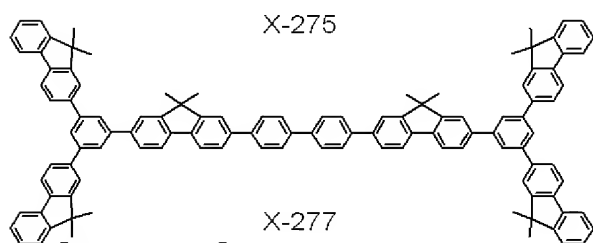
X-274



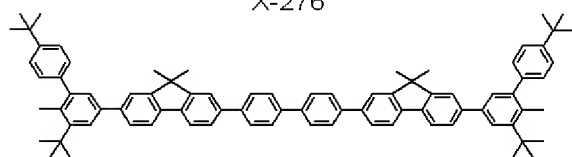
X-275



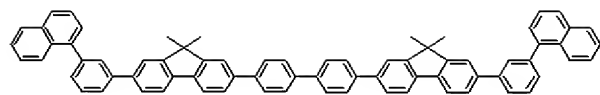
X-276



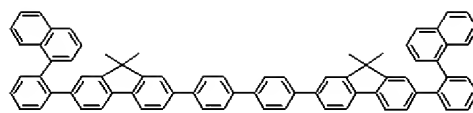
X-277



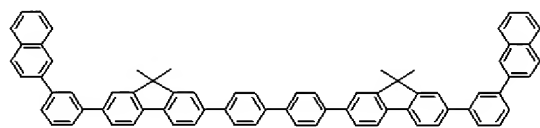
X-278



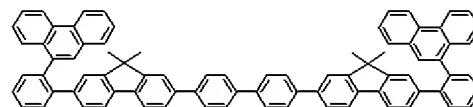
X-279



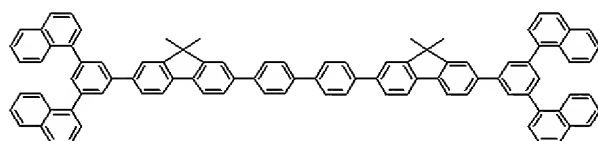
X-280



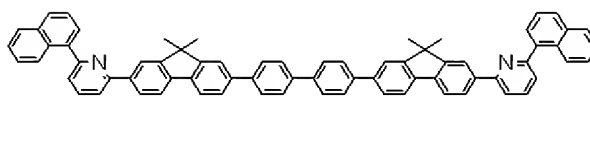
X-281



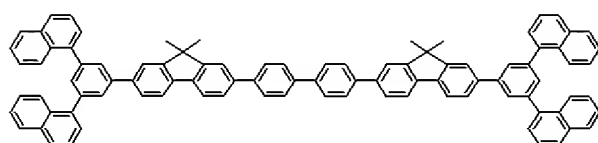
X-282



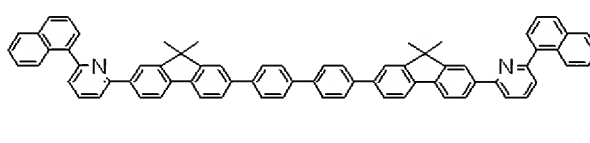
X-283



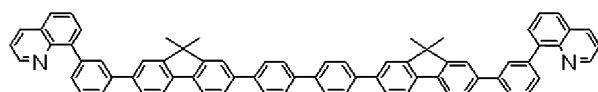
X-284



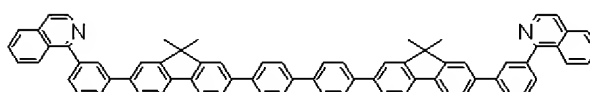
X-285



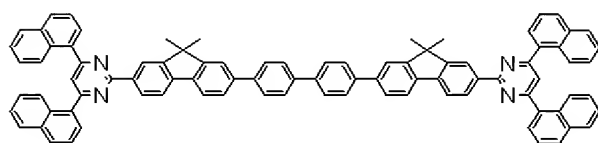
X-286



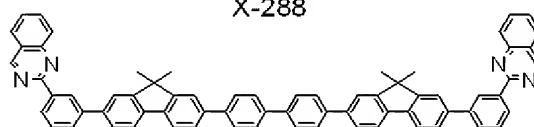
X-287



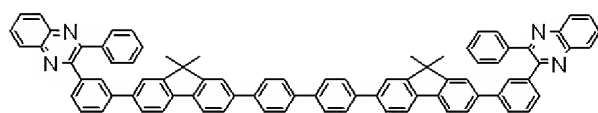
X-288



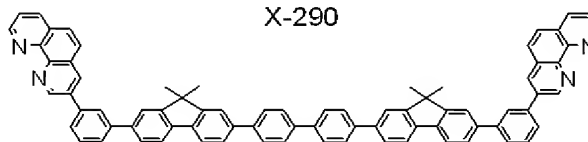
X-289



X-290

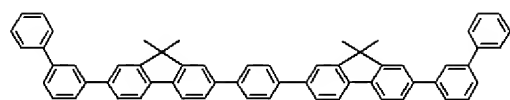


X-291

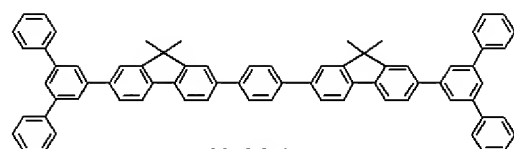


X-292

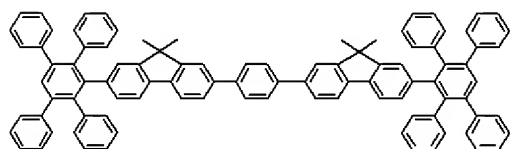
【化 3 0】



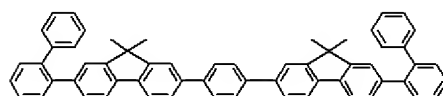
X-293



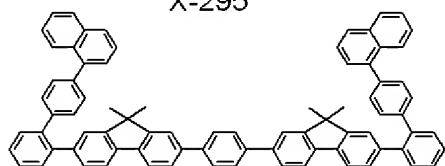
X-294



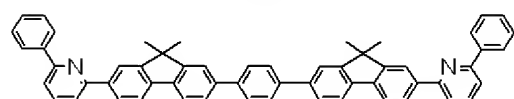
X-295



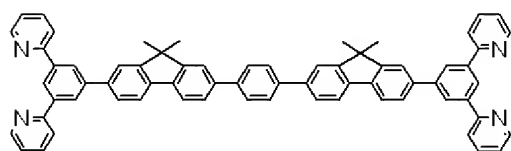
X-296



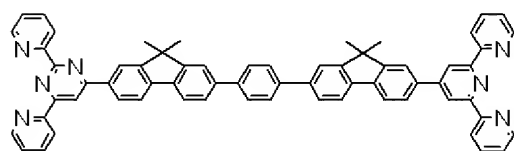
X-297



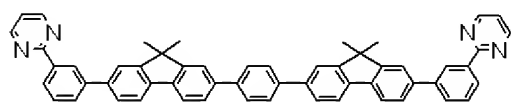
X-298



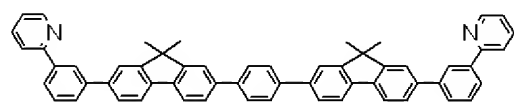
X-299



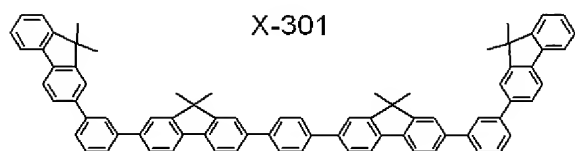
X-300



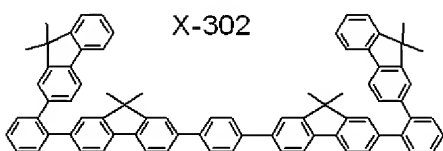
X-301



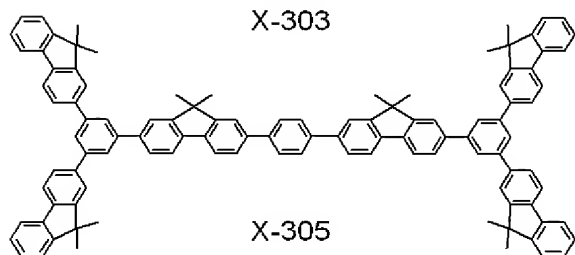
X-302



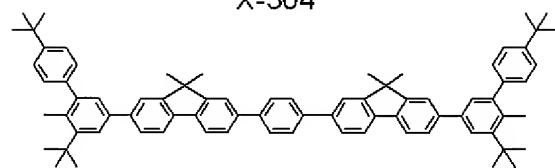
X-303



X-304



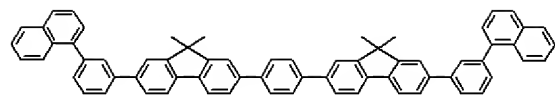
X-305



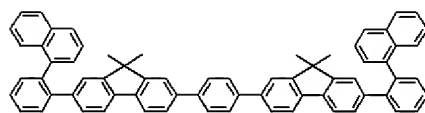
X-306

【 0 0 7 1】

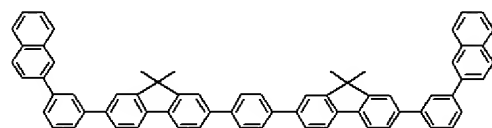
【化 3 1】



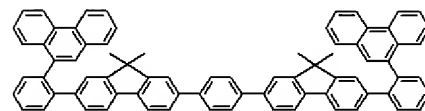
X-307



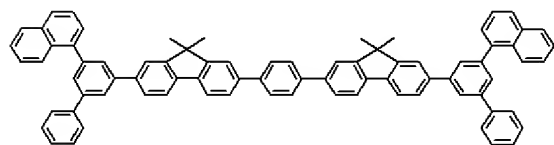
X-308



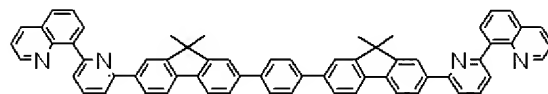
X-309



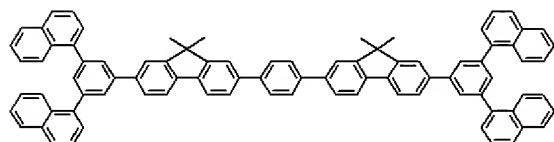
X-310



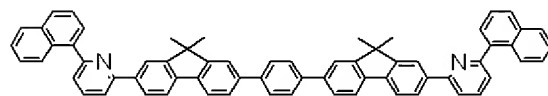
X-311



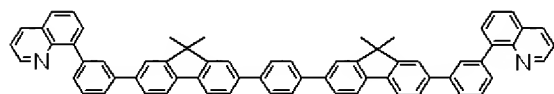
X-312



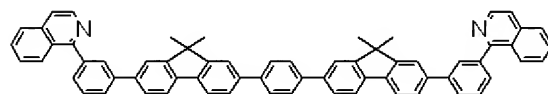
X-313



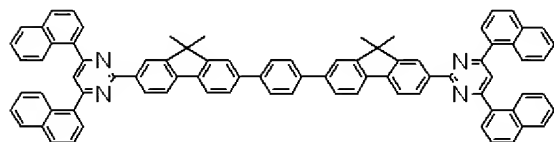
X-314



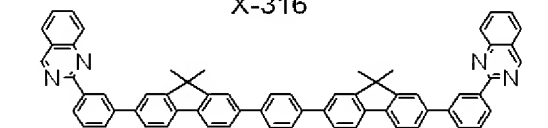
X-315



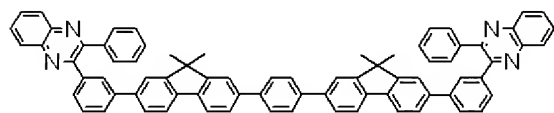
X-316



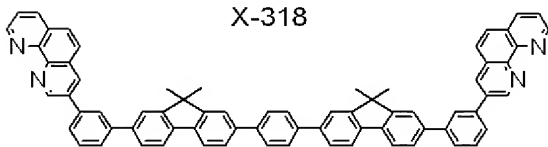
X-317



X-318



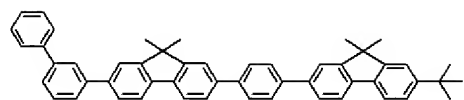
X-319



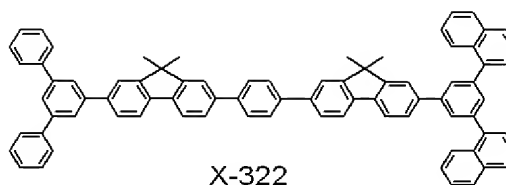
X-320

【 0 0 7 2 】

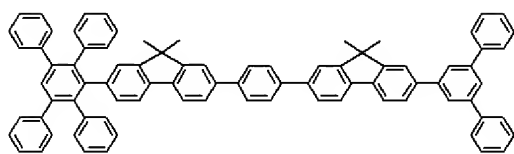
【化 3 2】



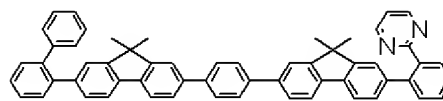
X-321



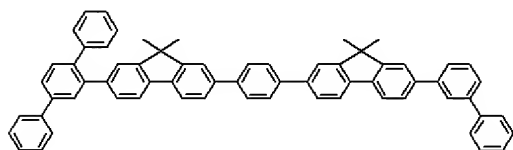
X-322



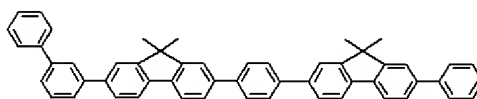
X-323



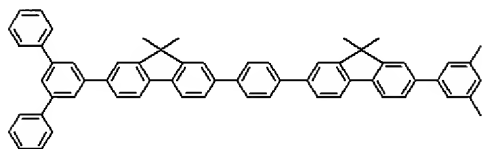
X-324



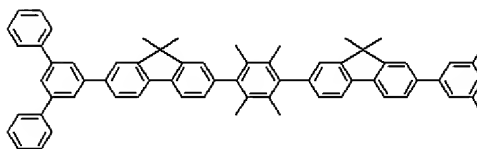
X-325



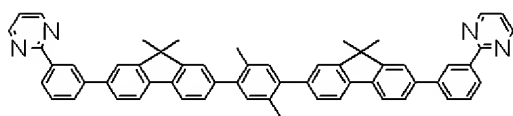
X-326



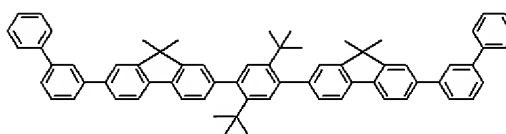
X-327



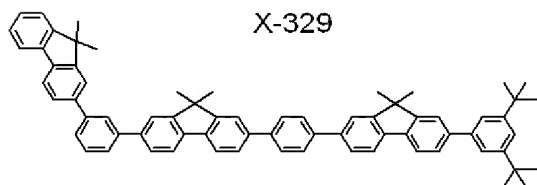
X-328



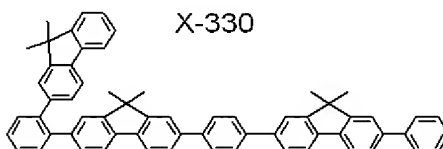
X-329



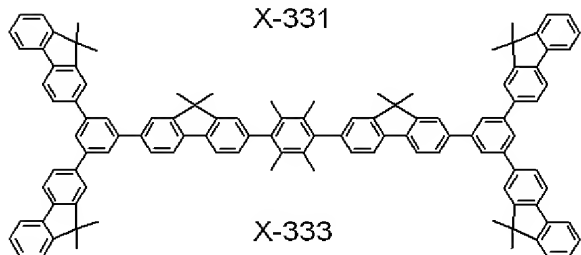
X-330



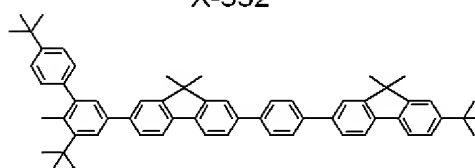
X-331



X-332



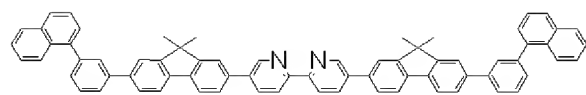
X-333



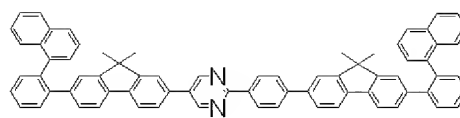
X-334

【 0 0 7 3 】

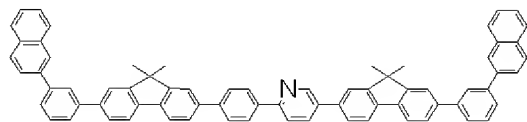
【化 3 3】



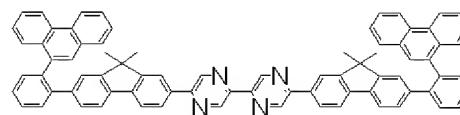
X-335



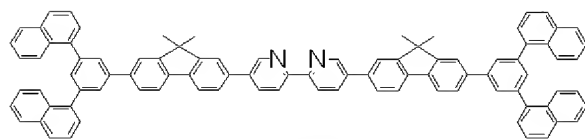
X-336



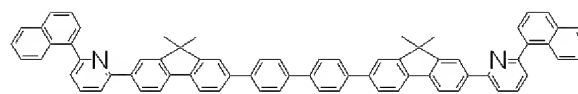
X-337



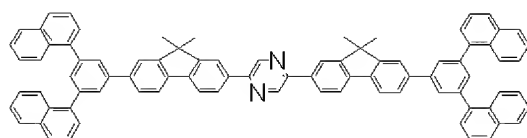
X-338



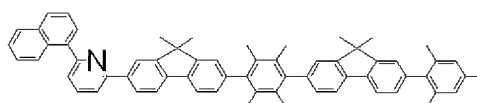
X-339



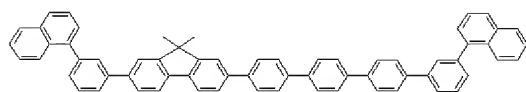
X-340



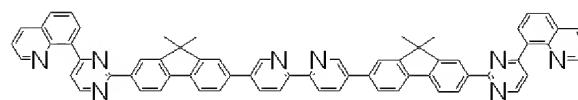
X-341



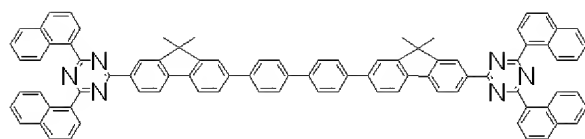
X-342



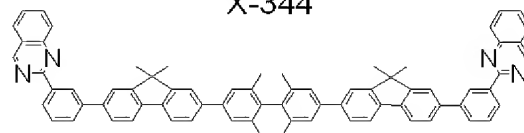
X-343



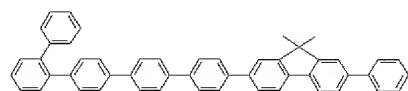
X-344



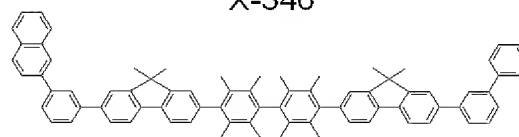
X-345



X-346



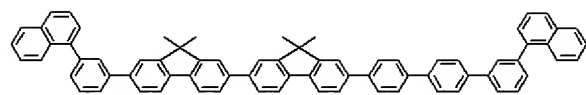
X-347



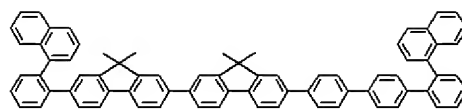
X-348

【 0 0 7 4 】

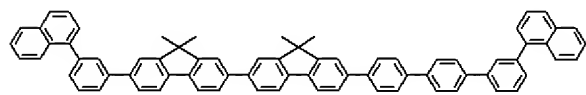
【化 3 4】



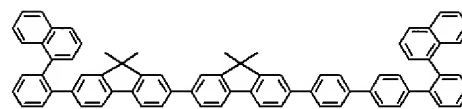
X-349



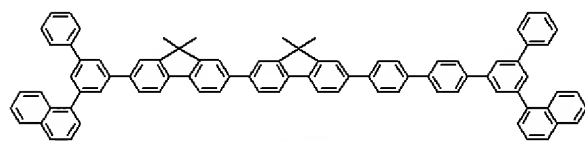
X-350



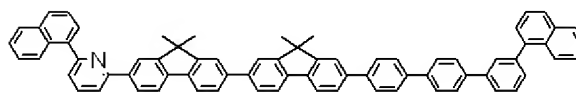
X-351



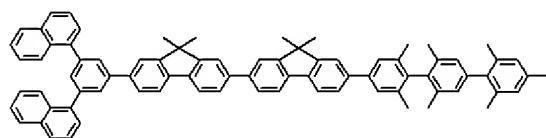
X-352



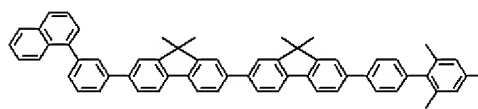
X-353



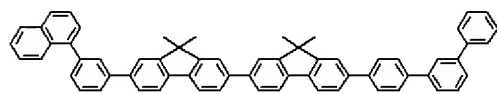
X-354



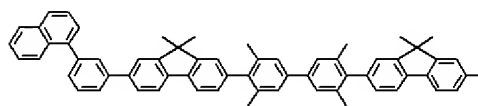
X-355



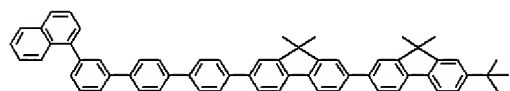
X-356



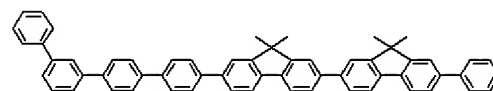
X-357



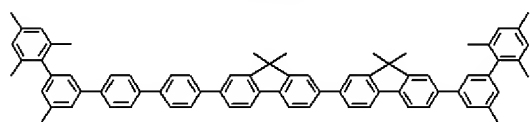
X-358



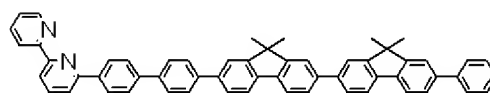
X-359



X-360



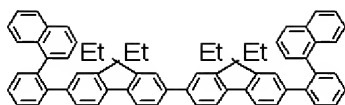
X-361



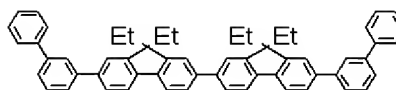
X-362

【 0 0 7 5】

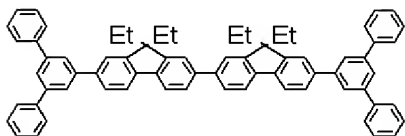
【化 3 5】



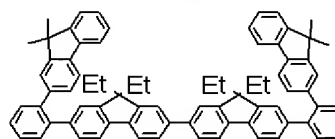
X-363



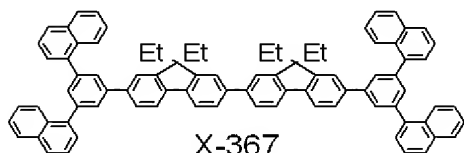
X-364



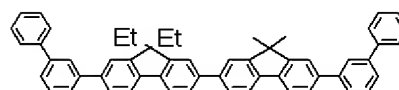
X-365



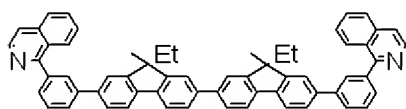
X-366



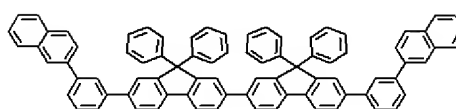
X-367



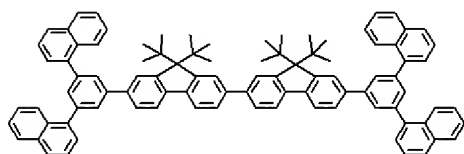
X-368



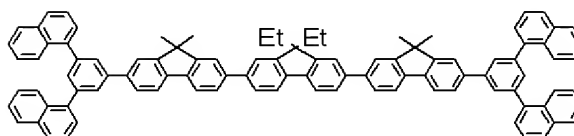
X-369



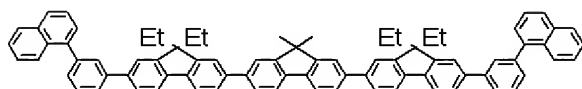
X-370



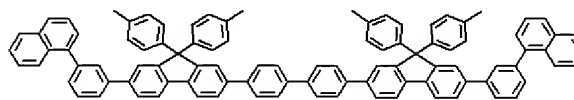
X-371



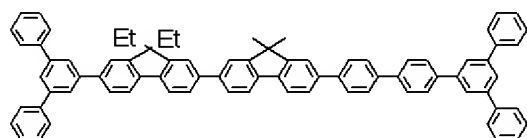
X-372



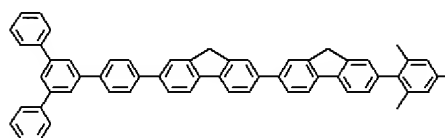
X-373



X-374



X-375



X-376

【 0 0 7 6 】

次に、本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子について説明する。

【 0 0 7 7 】

本発明の有機エレクトロルミネッセンス素子は、一対の電極間に、少なくとも一層の有機化合物を含む層を挟持してなり、有機化合物を含む層の少なくとも一層、好ましくは発光層が、本発明の化合物の少なくとも1種を、好ましくは発光層のホストとして含む。

【 0 0 7 8 】

また、本発明の化合物を発光層のホストとして使用する場合のゲスト分子は、一般的に知られている蛍光材料及び燐光発光材料を使用する事が出来るが、燐光発光材料が好ましい。高効率の発光素子を得る為には、好ましくは、燐光を発する事が知られている I r 錯



体、P t 錯体、R e 錯体、C u 錯体、E u 錯体、R h 錯体等の金属配位化合物が好ましい。より好ましくは、強い燐光を発する事が知られている I r 錯体（I r 配位化合物）が好ましい。さらに、発光層からの複色色の発光、及び、励起子や電荷伝達の補助を目的として発光層に複数の燐光発光材料を含有させる事も出来る。

#### 【0079】

本発明の化合物を含む有機層を作製する場合は、真空蒸着法、キャスト法、塗布法、スピンコート法、インクジェット法などにより製膜することができる。

#### 【0080】

以下、本発明の基本的な素子構成を図1に示した。

#### 【0081】

図1に示したように、一般に有機EL素子は透明基板15上に、50～200nmの膜厚を持つ透明電極14と、複数層の有機膜層と、及びこれを挟持するように金属電極11が形成される。

#### 【0082】

図1（a）では、有機層が発光層12とホール輸送層13からなる例を示した。透明電極14としては、仕事関数大きなITOなどが用いられ、透明電極14からホール輸送層13へホール注入しやすくしている。金属電極11には、アルミニウム、マグネシウムあるいはそれらを用いた合金など、仕事関数の小さな金属材料を用い、有機層への電子注入をしやすくしている。

#### 【0083】

発光層12には、本発明の化合物を用いているが、ホール輸送層13には、例えばトリフェニルジアミン誘導体、代表例としては $\alpha$ -NPDなど、電子供与性を有する材料も適宜用いることができる。

#### 【0084】

以上の構成した素子は電氣的整流性を示し、金属電極11を陰極に透明電極14を陽極になるように電界を印加すると、金属電極11から電子が発光層12に注入され、透明電極15からはホールが注入される。

#### 【0085】

注入されたホールと電子は、発光層12内で再結合して励起子が生じ、発光する。この時ホール輸送層13は電子のプロッキング層の役割を果たし、発光層12とホール輸送層13の間の界面における再結合効率が上がり、発光効率が上がる。

#### 【0086】

さらに図1（b）では、図1（a）の金属電極11と発光層12の間に、電子輸送層16が設けられている。発光機能と電子及びホール輸送機能を分離して、より効果的なキャリアプロッキング構成にすることで、発光効率を上げている。電子輸送層16としては、例えばオキサジアゾール誘導体などを用いることができる。

#### 【0087】

また図1（c）に示すように、陽極である透明電極14側から、ホール輸送層13、発光層12、励起子拡散防止層17、電子輸送層16、及び金属電極11からなる4層構成とすることも望ましい形態である。

#### 【実施例】

#### 【0088】

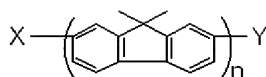
以下に実施例を挙げて本発明を具体的に説明する。但し、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 【0089】

<反応中間体の合成>

#### 【0090】

【化 3 6】



【0091】

(X、Yはそれぞれ独立に上記の基を表す。nは1～5の整数を表す。)

【0092】

まず、2-ハロゲノ-9H-フルオレン、2,7-ジハロゲノ-9H-フルオレンをBull. Chem. Soc. Jpn. 62 (1989) 439を参考にして合成した。得られた化合物をDMF中、CH<sub>3</sub>Cl、NaOCH<sub>3</sub>を用いてフルオレンの9位のジメチル化を行った。さらに、得られた2-ハロゲノ-9-ジメチルフルオレン、2,7-ジハロゲノ-9-ジメチルフルオレンを、ORGANIC SYNTHESES VIA BORANES Volume 3を参考に、ボロン酸またはボロン酸ピナコールエステル体の合成を行った。得られたこれらの化合物を鈴木カップリング(ORGANIC SYNTHESES VIA BORANES Volume 3)、ハロゲン化(Bull. Chem. Soc. Jpn. 62 (1989) 439)、ボロン酸合成を適宜組み合わせ、上記反応中間体を合成した。

【0093】

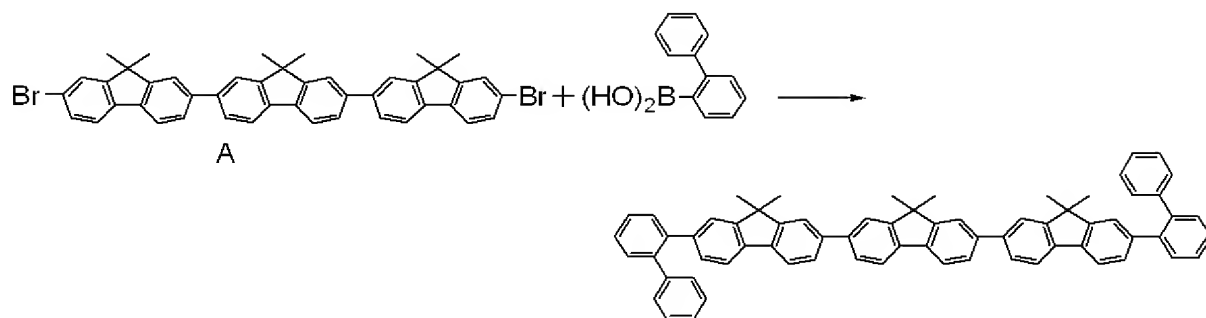
本発明の化合物は、上記反応中間体(フルオレン誘導体)とハロゲン化ベンゼン誘導体及びベンゼンボロン酸誘導体を適宜組み合わせ、鈴木カップリング反応によって、合成する事が出来る。

【0094】

<実施例1(例示化合物No. X-25の合成)>

【0095】

【化 3 7】



【0096】

化合物A 1g (1.35 mmole)、2-ビフェニルボロン酸 672 mg (3.39 mmole)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 156 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 mlを100 mlナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で8時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしアルミナカラムクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶した。得られた結晶を120℃で真空乾燥後、昇華精製を行い例示化合物No. X-25を700 mg (収率: 58%) 得た。

【0097】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析)によりこの化合物のM<sup>+</sup>である882.4を確認した。

【0098】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

$^1\text{H}$  NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm) : 7.82 (d, 4H), 7.77 (d, 4H), 7.69–7.62 (m, 20H), 7.57–7.53 (m, 4H), 7.49–7.43 (m, 12H), 7.29 (dd, 4H), 7.20–7.15 (m, 20H), 7.02 (d, 4H), 1.63 (s, 6H), 1.31 (s, 12H)

【0099】

また、この化合物のガラス転移温度は154℃であった。

【0100】

<実施例2>

本実施例では、素子構成として、図1(b)に示す有機層が3層の素子を使用した。

【0101】

ガラス基板(透明基板15)上に100nmのITO(透明電極14)をパターンニングした。そのITO基板上に、以下の有機層と電極層を $10^{-5}$ Paの真空チャンバー内で抵抗加熱による真空蒸着して連続製膜し、対向する電極面積が3mm<sup>2</sup>になるようにした。

ホール輸送層13(50nm) :  $\alpha$ -NPD

発光層12(50nm) : 【ホスト】例示化合物No. X-52、【ゲスト】Ir(4mq)<sub>3</sub>(重量比4%)とIr(bq)<sub>3</sub>(重量比8%)

電子輸送層16(50nm) : Bphen(同仁化学研究所製)

金属電極層1(1nm) : KF

金属電極層2(130nm) : Al

【0102】

EL素子の特性は、電流電圧特性を微小電流計4140B(ヒューレッドパッカード社製)で測定し、発光輝度は、BM7(トプコン社製)で測定した。

【0103】

本例の素子は11.3cd/A、10.4m/W(600cd/m<sup>2</sup>)の効率であった。また、電圧4V印加時に、25.1mA/cm<sup>2</sup>の電流値を示した。また、この素子に100mA/cm<sup>2</sup>の連続通電を行ったところ初期輝度5330cd/m<sup>2</sup>で輝度半減までの時間は、145時間であった。これらの結果を表1に示す。

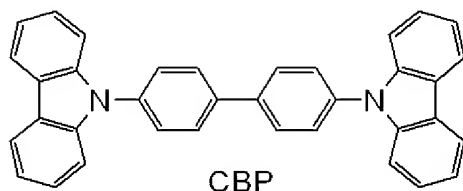
【0104】

<比較例1>

例示化合物No. X-25の代わりに、以下に示すCBPを用いる以外は実施例2と同様の方法により素子を作成した。

【0105】

【化38】



【0106】

本例の素子は17.2cd/A、12.2lm/W(600cd/m<sup>2</sup>)の効率であった。また、電圧8V印加時に、140mA/cm<sup>2</sup>の電流値を示した。また、この素子に100mA/cm<sup>2</sup>の連続通電を行ったところ初期輝度8010cd/m<sup>2</sup>で輝度半減までの時間は、113時間であった。これらの結果を表1に示す。

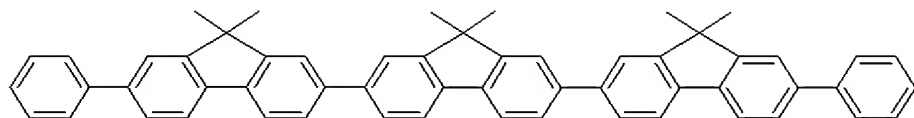
【0107】

<比較例2>

例示化合物No. X-25の代わりに、以下に示すDB3FLを用いる以外は実施例2と同様の方法により素子を作成した。

【 0 1 0 8 】

【 化 3 9 】



DB3FL

【 0 1 0 9 】

本例の素子は  $14.3 \text{ cd/A}$ 、 $14.01 \text{ m/W}$  ( $600 \text{ cd/m}^2$ ) の効率であった。また、電圧  $8 \text{ V}$  印加時に、 $720 \text{ mA/cm}^2$  の電流値を示した。また、この素子に  $100 \text{ mA/cm}^2$  の連続通電を行ったところ初期輝度  $7953 \text{ cd/m}^2$  で輝度半減までの時間は、 $265$  時間であった。これらの結果を表1に示す。

【 0 1 1 0 】

【 表 1 】

	発光層ホスト	ガラス転移温度 ( $^{\circ}\text{C}$ )	効率 ( $\text{lm/W}$ ) at $600 \text{ cd/m}^2$	電流値 ( $\text{mA/cm}^2$ ) at $8 \text{ V}$	半減時間 (h)
実施例 2	X-25	154	14.0	610	290
比較例 1	CBP	115	12.2	113	140
比較例 2	DB3FL	138	14.0	720	265

【 0 1 1 1 】

表1に示すように、本発明の化合物は、CBP、DB3FLよりも、高いガラス転移温

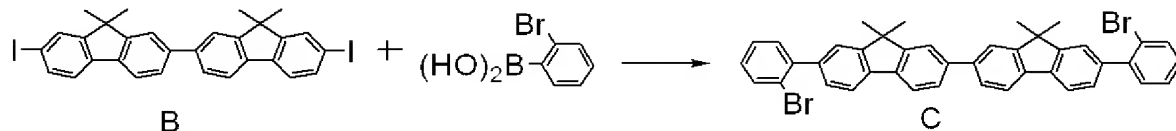
度を有する。また、本発明の化合物を発光層のホストとして用いた有機EL素子は、CBPを用いた素子よりも、電力効率が高く、半減寿命が2倍程度長い優れた素子である。また、同じ電圧値での電流値が5倍程度大きく、低電圧駆動が可能である点でも、非常に優れている。

【0112】

<実施例3（例示化合物No. X-23の合成）>

【0113】

【化40】



【0114】

化合物B 2 g (3.13 mmol)、2-ブロモフェニルボロン酸 1.38 g (6.89 mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 400 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 ml を 100 ml ナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で4時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしシリカゲルクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶しCを1.37 g (収率63%) 得た。

【0115】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析) によりこの化合物のM<sup>+</sup>である694.1を確認した。

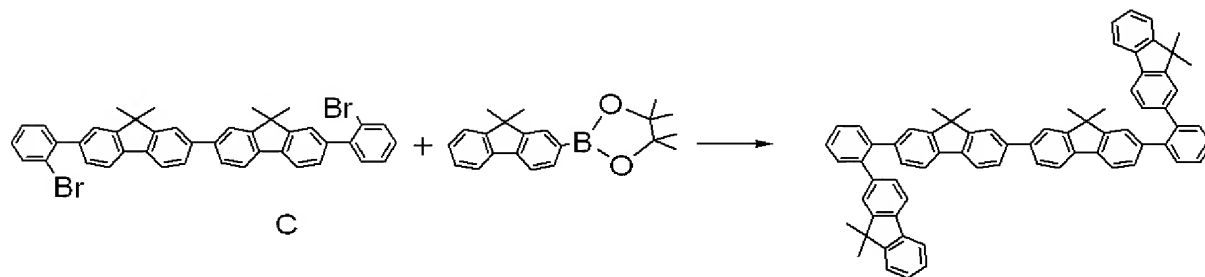
【0116】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

<sup>1</sup>H NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm): 7.81 (m, 4H), 7.69 (m, 6H), 7.53 (d, 2H), 7.40 (m, 6H), 7.02 (m, 2H), 1.61 (s, 12H).

【0117】

【化41】



【0118】

化合物C 1 g (1.44 mmol)、2-(9,9-ジメチル)-フルオレンボロン酸ピナコールエステル 1.01 g (3.16 mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 85 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 ml を 100 ml ナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で4時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしアルミナカラムクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶した。得られた結晶を120℃で真空乾燥後、昇華精製を行い例示化合物No. X-23を718 mg (収率: 54%) 得た。

【0119】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析) によりこの化合物のM<sup>+</sup>である922.5を確認した。

【0120】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

$^1\text{H}$  NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm) : 7.67 (m, 2H), 7.63 (m, 2H), 7.59–7.52 (m, 12H), 7.46 (m, 4H), 7.32–7.20 (m, 10H), 7.12 (d, 4H), 1.26 (s, 12H), 1.22 (s, 12H)

【0121】

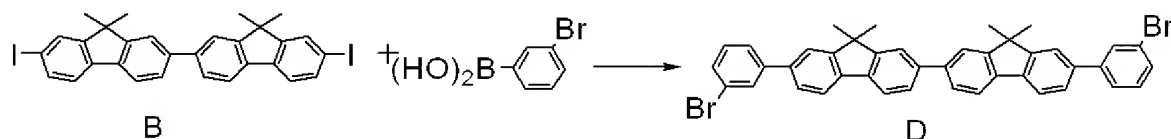
また、この化合物のガラス転移温度は170℃であった。

【0122】

<実施例4 (例示化合物No. X-24の合成)>

【0123】

【化42】



【0124】

化合物B 2 g (3.13 mmol)、3-ブロモフェニルボロン酸 1.38 mg (6.89 mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 400 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 ml を 100 ml ナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で4時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしアルミナカラムクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶し化合物Dを1.57 g (収率: 72%) 得た。

【0125】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析) によりこの化合物のM<sup>+</sup>である694.1を確認した。

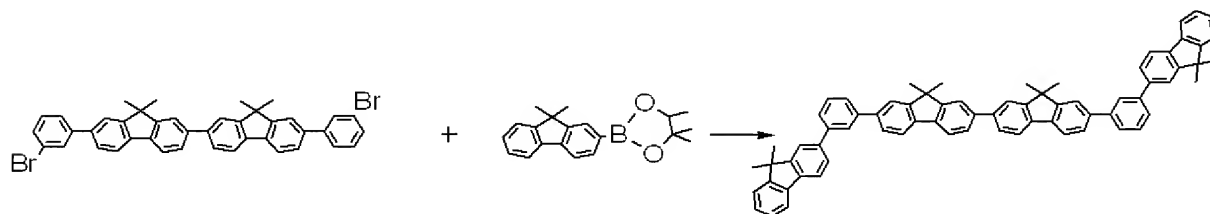
【0126】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

$^1\text{H}$  NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm) : 7.83 (d, 6H), 7.71–7.56 (m, 10H), 7.49 (m, 2H), 7.34 (t, 4H), 1.62 (s, 12H).

【0127】

【化43】



【0128】

化合物D 1 g (1.44 mmol)、2-(9,9-ジメチル)-フルオレンボロン酸ピナコールエステル 1.01 g (3.16 mmol)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 85 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 ml を 100 ml ナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で4時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしアルミナカラムクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶した。得られた結晶を120℃で真空乾燥後、昇華精製を行い例示化合物No. X-24を884 mg (収率: 64%) 得た。

【0129】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析) によりこの化合物の $M^+$ である922.5を確認した。

【0130】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

$^1\text{H}$  NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm): 7.93 (m, 2H), 7.85 (m, 6H), 7.81-7.43 (m, 18H), 7.58 (m, 4H), 7.47 (m, 2H), 7.35 (d, 4H), 1.64 (s, 12H), 1.56 (s, 12H)

【0131】

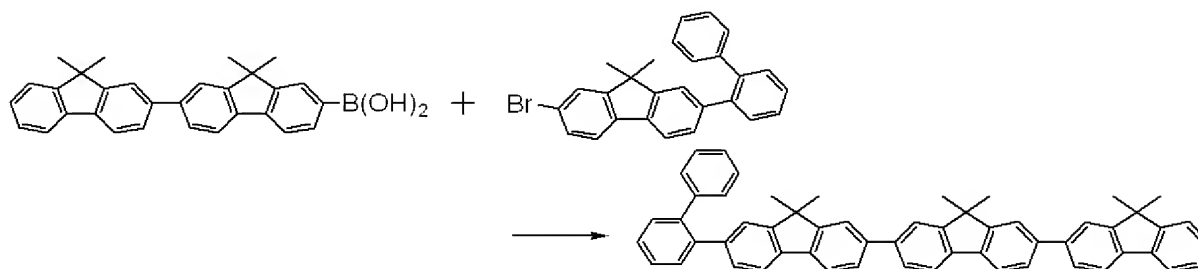
また、この化合物のガラス転移温度は151℃であった。

【0132】

<実施例5 (例示化合物No. X-31の合成)>

【0133】

【化44】



【0134】

2-ビフェニル-2-イル-7-ブromo-9,9-ジメチル-9H-フルオレン 1 g (2.35 mmole)、9,9,9',9'-テトラメチル-9H,9'H-[2,2']-ビフルオレニル-7-ボロン酸 1161 mg (2.70 mmole)、Pd(PPh<sub>3</sub>)<sub>4</sub> 90 mg、トルエン 20 ml、エタノール 10 ml、2M-炭酸ナトリウム水溶液 20 ml を 100 ml ナスフラスコに仕込み、窒素気流下、80℃で8時間攪拌を行った。反応終了後、トルエンで抽出し有機層を硫酸マグネシウムで乾燥後、乾燥剤をろ過し、溶媒を留去した。残渣をクロロホルムに溶かしアルミナカラムクロマトグラフィーで分離精製し、トルエンより再結晶した。得られた結晶を120℃で真空乾燥後、昇華精製を行い例示化合物No. X-31を1 mg (収率: 68%) 得た。

【0135】

MALDI-TOF MS (マトリックス支援イオン化-飛行時間型質量分析) によりこの化合物の $M^+$ である730.4を確認した。

【0136】

また、NMR測定によりこの化合物の構造を確認した。

$^1\text{H}$  NMR (CDCl<sub>3</sub>, 400 MHz)  $\sigma$  (ppm): 7.81 (m, 5H), 7.68 (m, 9H), 7.56 (m, 1H), 7.46 (m, 4H), 7.34 (m, 3H), 7.18 (m, 5H), 7.03 (m, 1H), 1.64 (s, 6H), 1.58 (s, 6H), 1.31 (s, 6H)

【0137】

また、この化合物のガラス転移温度は141℃であった。

【0138】

実施例1、実施例3、実施例4、実施例5、比較例1、比較例2のDSC測定による、物性値を表2にまとめた。

【0139】

DSC測定はパーキンエルマー製Pyris DSC1を用い測定した。ガラス転移温度の測定はガラス状態形成後、20 (℃/分) で昇温したときのガラス転移点を採用した。また、融点からの降温過程は40 (℃/分) で測定した。

【0140】

DSC装置による冷却過程でガラス転移点が観測されないものに関しては、融点+10℃まで昇温後、液体窒素により急冷しガラス状態を作成した。

【0141】

【表2】

	化合物	a) ガラス転移温度 (℃)	b) 再結晶化温度 (℃)	温度差 (℃) [a]-b]	融点 (℃)	冷却過程での 再結晶化 (℃)
比較例 1	CBP	115	150	35	285	283
比較例 2	DB3FL	138	184	46	308	306
実施例 1	X-25	154	236	82	340	観測されない
実施例 3	X-23	170	292	122	373	観測されない
実施例 4	X-24	151	240	89	327	観測されない
実施例 5	X-31	141	330	189	254	観測されない

【0142】

表2に示すように、本発明の化合物は、DSCでの同一条件下での昇温過程におけるガラス転移点と再結晶化温度の差は、本発明の化合物の方が、比較例1、比較例2に比べ広がっている。比較例1、2の化合物に比べ本発明の化合物では2倍弱～4倍強の温度差が観測された。一方、融点からの降温過程では、CBP、DB3FLでは、速やかに結晶化が観測されるのに対し、本発明の化合物は、結晶化をすることなくガラス転移点を迎え、ガラス状態を得る事が観測された。これらのことは、本発明の化合物が、CBP、DB3FLに比べ、より安定なアモルファス状態を作ることができることを示唆しており、また、アモルファス膜の作成にも有利に働くと言える。

【0143】

本発明の化合物は、DB3FLには無い分子長軸方向から側方にアリール基を付与したことによって、アモルファス膜作成に有利に働き、アモルファス性が向上した点において



非常に優れていると言える。

【0144】

＜実施例6（例示化合物No. X-1の合成）＞

実施例3の化合物Bの代わりに、2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンを用いる以外は実施例3と同様の方法で例示化合物No. X-1を合成する事が出来る。

【0145】

＜実施例7（例示化合物No. X-3の合成）＞

実施例4の化合物Bの代わりに、2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンを用いる以外は実施例4と同様の方法で例示化合物No. X-3を合成する事が出来る。

【0146】

＜実施例8（例示化合物No. X-5の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-5を合成する事が出来る。

【0147】

＜実施例9（例示化合物No. X-6の合成）＞

実施例8の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、3-ビフェニルボロン酸を用いる以外は実施例8と同様の方法で例示化合物No. X-6を合成する事が出来る。

【0148】

＜実施例10（例示化合物No. X-8の合成）＞

実施例8の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、2,5-ジフェニルベンゼンボロン酸を用いる以外は実施例8と同様の方法で例示化合物No. X-8を合成する事が出来る。

【0149】

＜実施例11（例示化合物No. X-12の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物Bを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-12を合成する事が出来る。

【0150】

＜実施例12（例示化合物No. X-13の合成）＞

実施例11の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、3-ビフェニルボロン酸を用いる以外は実施例11と同様の方法で例示化合物No. X-13を合成する事が出来る。

【0151】

＜実施例13（例示化合物No. X-14の合成）＞

実施例11の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、2,5-ジフェニルベンゼンボロン酸を用いる以外は実施例11と同様の方法で例示化合物No. X-14を合成する事が出来る。

【0152】

＜実施例14（例示化合物No. X-15の合成）＞

実施例10の2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンの代わりに化合物Bを用いる以外は実施例10と同様の方法で例示化合物No. X-15を合成する事が出来る。

【0153】

＜実施例15（例示化合物No. X-19の合成）＞

実施例6の2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンの代わりに、化合物Bを用いる以外は実施例6と同様の方法で例示化合物No. X-19を合成する事が出来る。

【0154】

＜実施例16（例示化合物No. X-20の合成）＞

実施例7の2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンの代わりに、化合物

Bを用いる以外は実施例7と同様の方法で例示化合物N o. X-20を合成する事が出来る。

【0155】

＜実施例17（例示化合物N o. X-22の合成）＞

実施例14の3, 5-ジフェニルベンゼンボロン酸の代わりに、3-(9, 9ジメチル)フルオレニル-5-フェニルベンゼンボロン酸を用いる以外は実施例14と同様の方法で例示化合物N o. X-22を合成する事が出来る。

【0156】

＜実施例18（例示化合物N o. X-26の合成）＞

実施例1の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、3-ビフェニルボロン酸を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N o. X-26を合成する事が出来る。

【0157】

＜実施例19（例示化合物N o. X-27の合成）＞

実施例3の化合物Bの代わりに、化合物Aを用いる以外は実施例3と同様の方法で例示化合物N o. X-27を合成する事が出来る。

【0158】

＜実施例20（例示化合物N o. X-28の合成）＞

実施例4の化合物Bの代わりに、化合物Aを用いる以外は実施例4と同様の方法で例示化合物N o. X-28を合成する事が出来る。

【0159】

＜実施例21（例示化合物N o. X-29の合成）＞

実施例1の2-フェニルボロン酸の代わりに、1, 1':4', 1''-ターリフェニル-3-ボロン酸を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N o. H-29を合成する事が出来る。

【0160】

＜実施例22（例示化合物N o. X-30の合成）＞

実施例1の2-フェニルボロン酸の代わりに、1, 1':4', 1''-ターリフェニル-2-ボロン酸を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N o. X-30を合成する事が出来る。

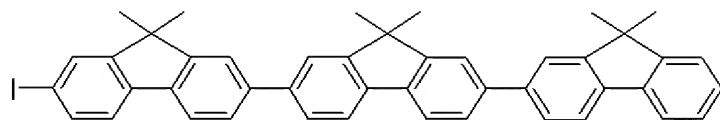
【0161】

＜実施例23（例示化合物N o. X-31の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物D1を用い2-ビフェニルボロン酸を1等量とすること以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N o. X-31を合成する事が出来る。

【0162】

【化45】



化合物D1

【0163】

＜実施例24（例示化合物N o. X-32の合成）＞

実施例23の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、3-ビフェニルボロン酸を用いること以外は実施例23と同様の方法で例示化合物N o. X-32を合成する事が出来る。

【0164】

＜実施例25（例示化合物N o. X-33の合成）＞

実施例3のBの代わりに、化合物D1を用い2-(9, 9ジメチル)-フルオレンボロン酸ピナコールエステルを1等量とすること以外は実施例3と同様の方法で例示化合物N o. X-33を合成する事が出来る。

【0165】

＜実施例26（例示化合物No. H-34の合成）＞

実施例4の化合物Bの代わりに、化合物D1を用い2-（9，9-ジメチル）-フルオレンボロン酸ピナコールエステルを1等量とすること以外は実施例4と同様の方法で例示化合物No. X-34を合成する事が出来る。

【0166】

＜実施例27（例示化合物No. X-39の合成）＞

実施例23の2-ビフェニルボロン酸の代わりに、3，5-ジフェニルベンゼンボロン酸を用いること以外は実施例23と同様の方法で例示化合物No. X-39を合成する事が出来る。

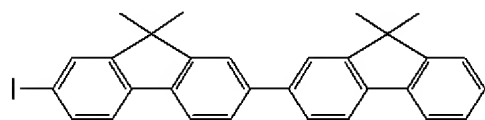
【0167】

＜実施例28（例示化合物No. X-48の合成）＞

実施例23の化合物D1の代わりに、化合物Eを用いる以外は実施例23と同様の方法で例示化合物No. X-48を合成する事が出来る。

【0168】

【化46】



化合物E

【0169】

＜実施例29（例示化合物No. X-49の合成）＞

実施例24の化合物D1の代わりに、化合物Eを用いる以外は実施例24と同様の方法で例示化合物No. X-49を合成する事が出来る。

【0170】

＜実施例30（例示化合物No. X-51の合成）＞

実施例27の化合物D1の代わりに、化合物Eを用いる以外は実施例27と同様の方法で例示化合物No. X-51を合成する事が出来る。

【0171】

＜実施例31（例示化合物No. X-57の合成）＞

実施例25の化合物D1の代わりに、化合物Eを用いる以外は実施例25と同様の方法で例示化合物No. X-57を合成する事が出来る。

【0172】

＜実施例32（例示化合物No. X-58の合成）＞

実施例26の化合物D1の代わりに、化合物Eを用いる以外は実施例26と同様の方法で例示化合物No. X-58を合成する事が出来る。

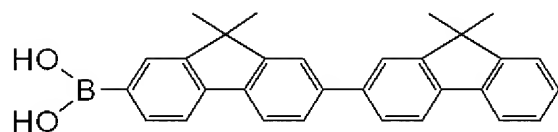
【0173】

＜実施例33（例示化合物No. X-61の合成）＞

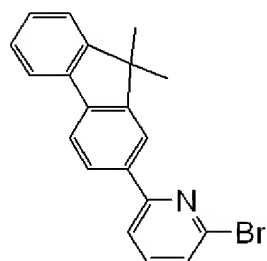
実施例28の化合物Eの代わりに、化合物Fを用い、2-ビフェニルベンゼンボロン酸の代わりに化合物Gを用いる以外は実施例28と同様の方法で例示化合物No. X-61を合成する事が出来る。

【0174】

【化 4 7】



化合物F



化合物G

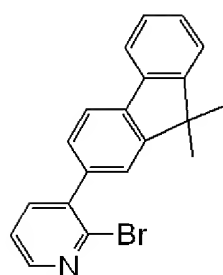
【0175】

＜実施例34（例示化合物No. X-62の合成）＞

実施例33の化合物Gの代わりに化合物Hを用いる以外は実施例33と同様の方法で例示化合物No. X-62を合成する事が出来る。

【0176】

【化 4 8】



化合物H

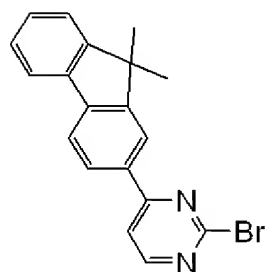
【0177】

＜実施例35（例示化合物No. X-63の合成）＞

実施例33の化合物Gの代わりに化合物Jを用いる以外は実施例33と同様の方法で例示化合物No. X-63を合成する事が出来る。

【0178】

【化 4 9】



化合物J

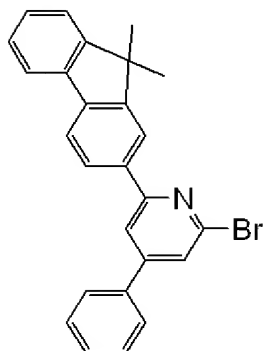
【0179】

＜実施例 36（例示化合物 N o. X-64 の合成）＞

実施例 33 の化合物 G の代わりに化合物 I を用いる以外は実施例 33 と同様の方法で例示化合物 N o. X-64 を合成する事が出来る。

【0180】

【化50】



化合物I

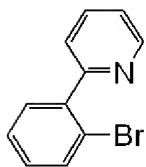
【0181】

＜実施例 37（例示化合物 N o. X-65 の合成）＞

実施例 33 の化合物 G の代わりに化合物 K を用いる以外は実施例 33 と同様の方法で例示化合物 N o. X-65 を合成する事が出来る。

【0182】

【化51】



化合物K

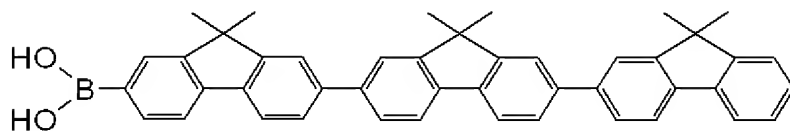
【0183】

＜実施例 38（例示化合物 N o. X-71 の合成）＞

実施例 33 の化合物 F の代わりに化合物 N を用い、化合物 G の代わりに化合物 K を用いること以外は実施例 33 と同様の方法で例示化合物 N o. X-71 を合成する事が出来る。

【0184】

【化52】



化合物N

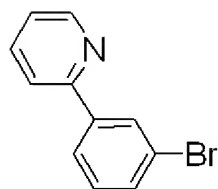
【0185】

＜実施例 39（例示化合物 N o. X-72 の合成）＞

実施例 38 の化合物 K の代わりに化合物 M を用いること以外は実施例 38 と同様の方法で例示化合物 N o. X-72 を合成する事が出来る。

【0186】

【化 5 3】



化合物M

【0187】

＜実施例40（例示化合物No. X-73の合成）＞

実施例38の化合物Kの代わりに化合物Hを用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物No. X-73を合成する事が出来る。

【0188】

＜実施例41（例示化合物No. X-74の合成）＞

実施例38の化合物Kの代わりに化合物Gを用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物No. X-74を合成する事が出来る。

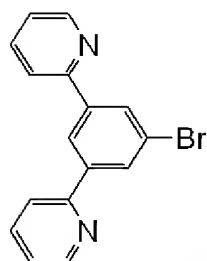
【0189】

＜実施例42（例示化合物No. X-78の合成）＞

実施例38の化合物Kの代わりに化合物N1を用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物No. X-78を合成する事が出来る。

【0190】

【化 5 4】



化合物N1

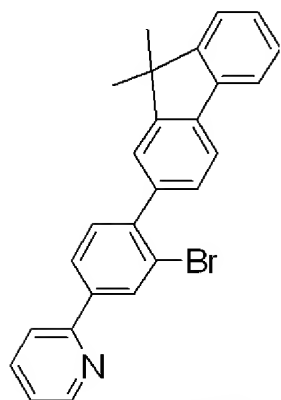
【0191】

＜実施例43（例示化合物No. X-82の合成）＞

実施例38の化合物Kの代わりに化合物Lを用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物No. X-82を合成する事が出来る。

【0192】

【化 5 5】



化合物L

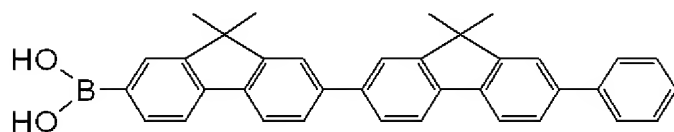
【0193】

<実施例 4 4（例示化合物 N o. X-8 4 の合成）>

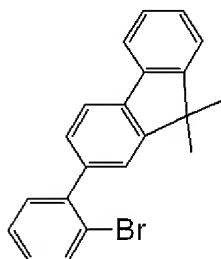
実施例 3 8 の化合物 N の代わりに化合物 O を用い、化合物 K の代わりに化合物 P を用いること以外は実施例 3 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-8 4 を合成する事が出来る。

【0 1 9 4】

【化 5 6】



化合物O



化合物P

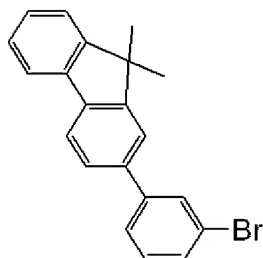
【0 1 9 5】

<実施例 4 5（例示化合物 N o. X-8 5 の合成）>

実施例 4 4 の化合物 P の代わりに化合物 Q を用いること以外は実施例 4 4 と同様の方法で例示化合物 N o. X-8 5 を合成する事が出来る。

【0 1 9 6】

【化 5 7】



化合物Q

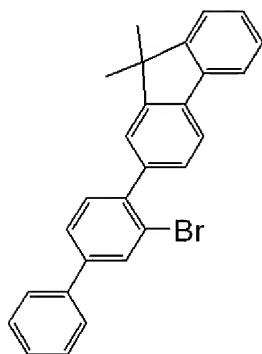
【0 1 9 7】

<実施例 4 6（例示化合物 N o. X-8 6 の合成）>

実施例 4 4 の化合物 P の代わりに化合物 R を用いること以外は実施例 4 4 と同様の方法で例示化合物 N o. X-8 6 を合成する事が出来る。

【0 1 9 8】

【化 5 8】



化合物R

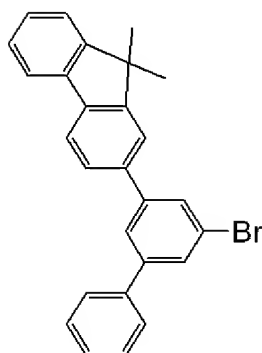
【0199】

＜実施例47（例示化合物No. X-87の合成）＞

実施例44の化合物Pの代わりに化合物Sを用いること以外は実施例44と同様の方法で例示化合物No. X-87を合成する事が出来る。

【0200】

【化 5 9】



化合物S

【0201】

＜実施例48（例示化合物No. X-90の合成）＞

実施例44の化合物Pの代わりに2-ビフェニルブロマイドを用いること以外は実施例44と同様の方法で例示化合物No. X-90を合成する事が出来る。

【0202】

＜実施例49（例示化合物No. X-91の合成）＞

実施例44の化合物Pの代わりに3-ビフェニルブロマイドを用いること以外は実施例44と同様の方法で例示化合物No. X-91を合成する事が出来る。

【0203】

＜実施例50（例示化合物No. X-92の合成）＞

実施例44の化合物Pの代わりに2,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例44と同様の方法で例示化合物No. X-92を合成する事が出来る。

【0204】

＜実施例51（例示化合物No. X-93の合成）＞

実施例44の化合物Pの代わりに3,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例44と同様の方法で例示化合物No. X-93を合成する事が出来る。

【0205】

＜実施例52（例示化合物No. X-97の合成）＞

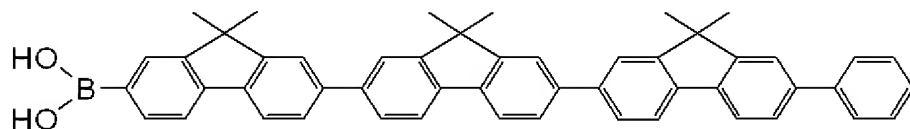
実施例38の化合物Nの代わりに化合物Tを用い、化合物Kの代わりに化合物Rを用い



ること以外は実施例 38 と同様の方法で例示化合物 N o. X-97 を合成する事が出来る。

【0206】

【化60】



化合物T

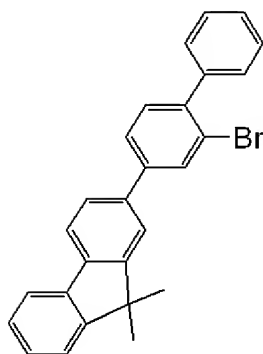
【0207】

＜実施例 53（例示化合物 N o. X-98 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに化合物 U を用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-98 を合成する事が出来る。

【0208】

【化61】



化合物U

【0209】

＜実施例 54（例示化合物 N o. X-103 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに 2,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-103 を合成する事が出来る。

【0210】

＜実施例 55（例示化合物 N o. X-104 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに 3,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-104 を合成する事が出来る。

【0211】

＜実施例 56（例示化合物 N o. X-108 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに 2-ビフェニルプロマイドを用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-108 を合成する事が出来る。

【0212】

＜実施例 57（例示化合物 N o. X-109 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに 3-ビフェニルプロマイドを用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-109 を合成する事が出来る。

【0213】

＜実施例 58（例示化合物 N o. X-110 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに化合物 Q を用いること以外は実施例 52 と同様の方法で例示化合物 N o. X-110 を合成する事が出来る。

【0214】

＜実施例 59（例示化合物 N o. X-111 の合成）＞

実施例 52 の化合物 R の代わりに化合物 P を用いること以外は実施例 52 と同様の方法

で例示化合物N o. X-111を合成する事が出来る。

【0215】

＜実施例60（例示化合物N o. X-112の合成）＞

実施例52の化合物Rの代わりに化合物Sを用いること以外は実施例52と同様の方法で例示化合物N o. X-112を合成する事が出来る。

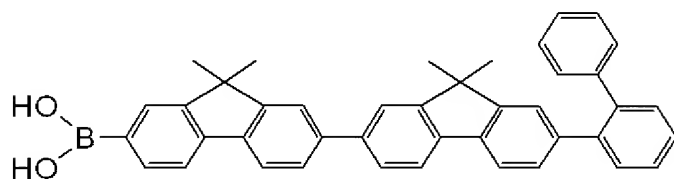
【0216】

＜実施例61（例示化合物N o. X-113の合成）＞

実施例38の化合物Nの代わりに化合物Vを用い、化合物Kの代わりに化合物Pを用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物N o. X-113を合成する事が出来る。

【0217】

【化62】



化合物V

【0218】

＜実施例62（例示化合物N o. X-114の合成）＞

実施例61の化合物Pの代わりに化合物Qを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-114を合成する事が出来る。

【0219】

＜実施例63（例示化合物N o. X-115の合成）＞

実施例61の化合物Pの代わりに化合物Sを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-115を合成する事が出来る。

【0220】

＜実施例64（例示化合物N o. X-116の合成）＞

実施例61の化合物Pの代わりに化合物Rを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-116を合成する事が出来る。

【0221】

＜実施例65（例示化合物N o. X-120の合成）＞

実施例61の化合物Pの代わりに2-ビフェニルプロマイドを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-120を合成する事が出来る。

【0222】

＜実施例66（例示化合物N o. X-121の合成）＞

実施例61の化合物Pの代わりに2,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-121を合成する事が出来る。

【0223】

＜実施例67（例示化合物N o. X-122の合成）＞

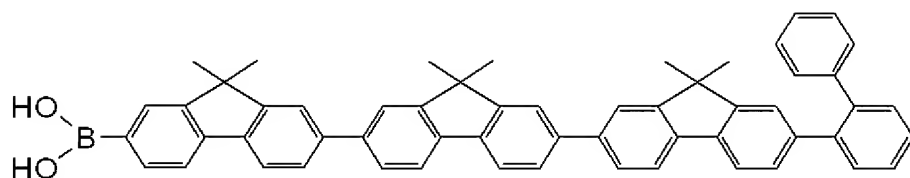
実施例61の化合物Pの代わりに3,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例61と同様の方法で例示化合物N o. X-122を合成する事が出来る。

【0224】

＜実施例68（例示化合物N o. X-126の合成）＞

実施例38の化合物Nの代わりに化合物Wを用い、化合物Kの代わりに化合物Rを用いること以外は実施例38と同様の方法で例示化合物N o. X-126を合成する事が出来る。

【0225】



化合物W

【0 2 2 6】

＜実施例 6 9（例示化合物 N o. X-1 2 7 の合成）＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに化合物 U を用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 2 7 を合成する事が出来る。

【0 2 2 7】

＜実施例 7 0（例示化合物 N o. X-1 2 8 の合成）＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに化合物 S を用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 2 8 を合成する事が出来る。

【0 2 2 8】

＜実施例 7 1 例示化合物 N o. X-1 3 2 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに 2, 5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 3 2 を合成する事が出来る。

【0 2 2 9】

＜実施例 7 2 例示化合物 N o. X-1 3 3 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに 3, 5-ジフェニルプロモベンゼンを用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 3 3 を合成する事が出来る。

【0 2 3 0】

＜実施例 7 3 例示化合物 N o. X-1 3 7 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに 1, 1':4', 1''-ターリフェニル-3-ブロマイドを用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 3 7 を合成する事が出来る。

【0 2 3 1】

＜実施例 7 4 例示化合物 N o. X-1 3 8 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに化合物 Q を用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 3 8 を合成する事が出来る。

【0 2 3 2】

＜実施例 7 5 例示化合物 N o. X-1 3 9 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに 1, 1':4', 1''-ターリフェニル-2-ブロマイドを用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 3 9 を合成する事が出来る。

【0 2 3 3】

＜実施例 7 6 例示化合物 N o. X-1 4 0 の合成＞

実施例 6 8 の化合物 R の代わりに化合物 P を用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 4 0 を合成する事が出来る。

【0 2 3 4】

＜実施例 7 7 例示化合物 N o. X-1 4 1 の合成＞

実施例 6 8 の、化合物 R の代わりに 3 s-ビフェニルプロマイドを用いること以外は実施例 6 8 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 4 1 を合成する事が出来る。

【0 2 3 5】

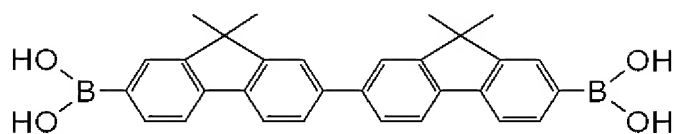
＜実施例 7 8（例示化合物 N o. X-1 4 2 の合成）＞

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 A d を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 H を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 N o. X-1 4 2 を合成す

る事が出来る。

【 0 2 3 6 】

【 化 6 4 】



化合物Ad

【 0 2 3 7 】

< 実施例 7 9 ( 例示化合物 N o . X - 1 4 3 の合成 ) >

実施例 7 8 の化合物 H の代わりに、化合物 G を用いる以外は実施例 7 8 と同様の方法で例示化合物 N o . X - 1 4 3 を合成する事が出来る。

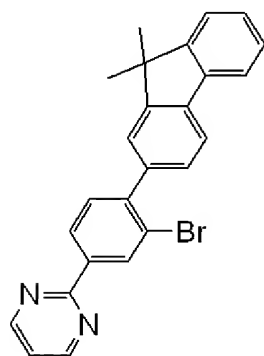
【 0 2 3 8 】

< 実施例 8 0 ( 例示化合物 N o . X - 1 4 4 の合成 ) >

実施例 7 8 の化合物 H の代わりに、化合物 A a を用いる以外は実施例 7 8 と同様の方法で例示化合物 N o . X - 1 4 4 を合成する事が出来る。

【 0 2 3 9 】

【 化 6 5 】



化合物Aa

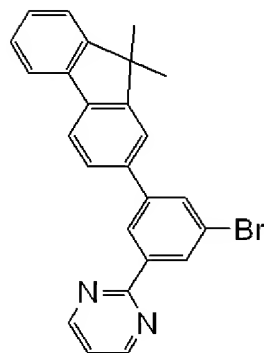
【 0 2 4 0 】

< 実施例 8 1 ( 例示化合物 N o . X - 1 4 6 の合成 ) >

実施例 7 8 の化合物 H の代わりに、化合物 A b を用いる以外は実施例 7 8 と同様の方法で例示化合物 N o . X - 1 4 6 を合成する事が出来る。

【 0 2 4 1 】

【 化 6 6 】



化合物Ab

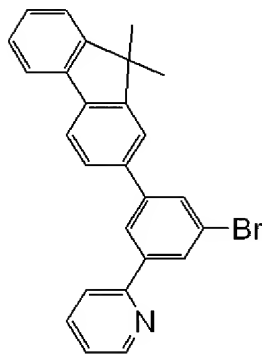
【 0 2 4 2 】

< 実施例 8 2 ( 例示化合物 N o . X - 1 4 7 の合成 ) >

実施例 78 の化合物 H の代わりに、化合物 A c を用いる以外は実施例 78 と同様の方法で例示化合物 N o . X-147 を合成する事が出来る。

【0243】

【化67】



化合物Ac

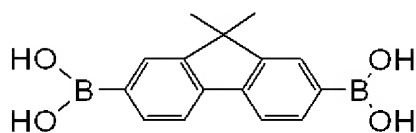
【0244】

<実施例 83 (例示化合物 N o . X-149 の合成)>

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 A e を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 A a を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 N o . X-149 を合成する事が出来る。

【0245】

【化68】



化合物Ae

【0246】

<実施例 84 (例示化合物 N o . X-150 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 H を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-150 を合成する事が出来る。

【0247】

<実施例 85 (例示化合物 N o . X-151 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 G を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-151 を合成する事が出来る。

【0248】

<実施例 86 (例示化合物 N o . X-152 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 A b を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-152 を合成する事が出来る。

【0249】

<実施例 87 (例示化合物 N o . X-154 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 A c を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-154 を合成する事が出来る。

【0250】

<実施例 88 (例示化合物 N o . X-162 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 N 1 を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-162 を合成する事が出来る。

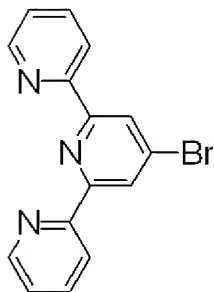
【0251】

<実施例 89 (例示化合物 N o . X-165 の合成)>

実施例 83 の化合物 A a の代わりに化合物 A g を用いる以外は実施例 83 と同様の方法で例示化合物 N o . X-165 を合成する事が出来る。

【0252】

【化69】



化合物Ag

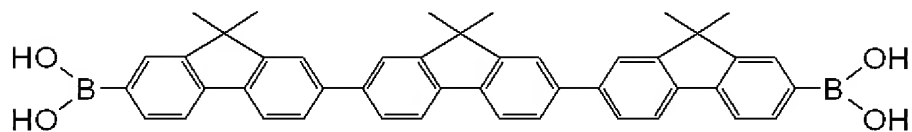
【0253】

＜実施例 90（例示化合物 N o . X-168 の合成）＞

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 A f を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 K を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 N o . X-168 を合成する事が出来る。

【0254】

【化70】



化合物Af

【0255】

＜実施例 91（例示化合物 N o . X-169 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 H を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-169 を合成する事が出来る。

【0256】

＜実施例 92（例示化合物 N o . X-170 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 G を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-170 を合成する事が出来る。

【0257】

＜実施例 93（例示化合物 N o . X-176 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 A g を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-176 を合成する事が出来る。

【0258】

＜実施例 94（例示化合物 N o . X-179 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 L を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-179 を合成する事が出来る。

【0259】

＜実施例 95（例示化合物 N o . X-181 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 A b を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-181 を合成する事が出来る。

【0260】

＜実施例 96（例示化合物 N o . X-182 の合成）＞

実施例 90 の化合物 K の代わりに化合物 N を用いる以外は実施例 90 と同様の方法で例示化合物 N o . X-182 を合成する事が出来る。

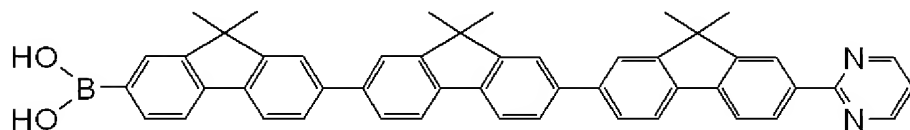
【0261】

＜実施例97（例示化合物No. X-183の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物Ahを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物2，5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-183を合成する事が出来る。

【0262】

【化71】



化合物Ah

【0263】

＜実施例98（例示化合物No. X-185の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに3，5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-185を合成する事が出来る。

【0264】

＜実施例99（例示化合物No. X-193の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに2-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-193を合成する事が出来る。

【0265】

＜実施例100（例示化合物No. X-194の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに3-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-184を合成する事が出来る。

【0266】

＜実施例101（例示化合物No. X-195の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに化合物Pを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-195を合成する事が出来る。

【0267】

＜実施例102（例示化合物No. X-196の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに化合物Qを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-196を合成する事が出来る。

【0268】

＜実施例103（例示化合物No. X-197の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに1，1'：4'，1''-ターリフェニル-3-プロマイドを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-197を合成する事が出来る。

【0269】

＜実施例104（例示化合物No. X-198の合成）＞

実施例97の2，5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに1，1'：4'，1''-ターリフェニル-2-プロマイドを用いる以外は実施例97と同様の方法で例示化合物No. X-198を合成する事が出来る。

【0270】

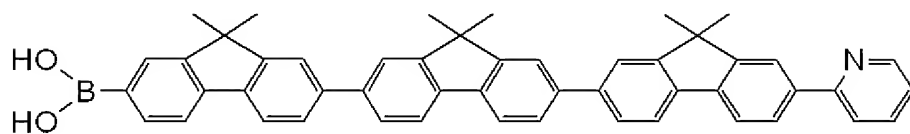
＜実施例105（例示化合物No. X-184の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物Aiを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物2，5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示

化合物 N o. X-183 を合成する事が出来る。

【0271】

【化72】



化合物Ai

【0272】

＜実施例106（例示化合物 N o. X-186 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに3,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-186 を合成する事が出来る。

【0273】

＜実施例107（例示化合物 N o. X-187 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに2-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-187 を合成する事が出来る。

【0274】

＜実施例108（例示化合物 N o. X-188 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに3-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-188 を合成する事が出来る。

【0275】

＜実施例109（例示化合物 N o. X-189 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに化合物Pを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-189 を合成する事が出来る。

【0276】

＜実施例110（例示化合物 N o. X-190 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに化合物Qを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-190 を合成する事が出来る。

【0277】

＜実施例111（例示化合物 N o. X-191 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに1,1':4',1''-ターリフェニル-2-プロマイドを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-191 を合成する事が出来る。

【0278】

＜実施例112（例示化合物 N o. X-192 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに1,1':4',1''-ターリフェニル-3-プロマイドを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-192 を合成する事が出来る。

【0279】

＜実施例113（例示化合物 N o. X-199 の合成）＞

実施例105の2,5-ジフェニルプロモベンゼンの代わりに化合物Rを用いる以外は実施例105と同様の方法で例示化合物 N o. X-199 を合成する事が出来る。

【0280】

＜実施例114（例示化合物 N o. X-201 の合成）＞

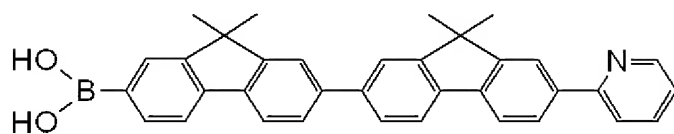
実施例1の化合物Aの代わりに、化合物Ajを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに3-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物 N o. X



ー 201 を合成する事が出来る。

【0281】

【化73】



化合物Aj

【0282】

＜実施例115（例示化合物No. X-202の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに2-ビフェニルプロマイドを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-201を合成する事が出来る。

【0283】

＜実施例116（例示化合物No. X-203の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに3,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-203を合成する事が出来る。

【0284】

＜実施例117（例示化合物No. X-204の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに2,5-ジフェニルプロモベンゼンを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-204を合成する事が出来る。

【0285】

＜実施例118（例示化合物No. X-205の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに化合物Qを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-203を合成する事が出来る。

【0286】

＜実施例119（例示化合物No. X-207の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに化合物Pを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-207を合成する事が出来る。

【0287】

＜実施例120（例示化合物No. X-211の合成）＞

実施例114の3-ビフェニルプロマイドの代わりに化合物Sを用いる以外は実施例114と同様の方法で例示化合物No. X-211を合成する事が出来る。

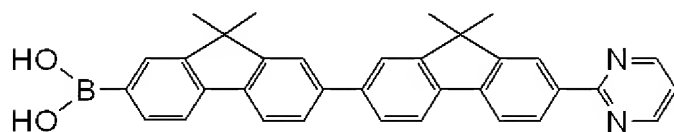
【0288】

＜実施例121（例示化合物No. X-206の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物Akを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物Qを用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-206を合成する事が出来る。

【0289】

【化74】



化合物Ak

【0290】

＜実施例122（例示化合物No. X-208の合成）＞

実施例121の化合物Qの代わりに化合物Pを用いる以外は実施例121と同様の方法

で例示化合物No. X-208を合成する事が出来る。

【0291】

＜実施例123（例示化合物No. X-210の合成）＞

実施例121の化合物Qの代わりに化合物Sを用いる以外は実施例121と同様の方法で例示化合物No. X-210を合成する事が出来る。

【0292】

＜実施例124（例示化合物No. X-214の合成）＞

実施例121の化合物Qの代わりに化合物Rを用いる以外は実施例121と同様の方法で例示化合物No. X-214を合成する事が出来る。

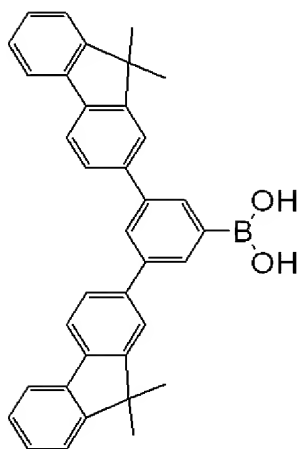
【0293】

＜実施例125（例示化合物No. X-215の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物Ak1を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-215を合成する事が出来る。

【0294】

【化75】



化合物Ak1

【0295】

＜実施例126（例示化合物No. X-216の合成）＞

実施例125の2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンの代わりに化合物Bを用いる以外は実施例125と同様の方法で例示化合物No. X-216を合成する事が出来る。

【0296】

＜実施例127（例示化合物No. X-217の合成）＞

実施例125の2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンの代わりに化合物Aを用いる以外は実施例125と同様の方法で例示化合物No. X-217を合成する事が出来る。

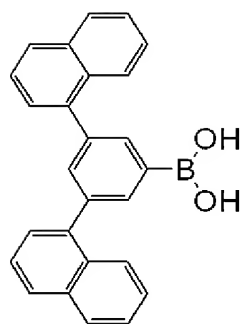
【0297】

＜実施例128（例示化合物No. X-229の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、2,7-ジヨード-(9,9-ジメチル)-フルオレンを用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物A1を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物No. X-229を合成する事が出来る。

【0298】

【化 7 6】



化合物AI

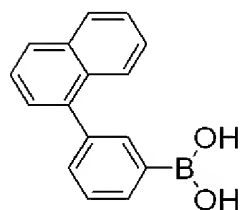
【0 2 9 9】

＜実施例 1 2 9（例示化合物 No. X-2 3 8 の合成）＞

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 B を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 Am を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 No. X-2 3 8 を合成する事が出来る。

【0 3 0 0】

【化 7 7】



化合物Am

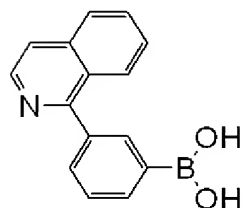
【0 3 0 1】

＜実施例 1 3 0（例示化合物 No. X-2 4 2 の合成）＞

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 B を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 An を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 No. X-2 4 2 を合成する事が出来る。

【0 3 0 2】

【化 7 8】



化合物An

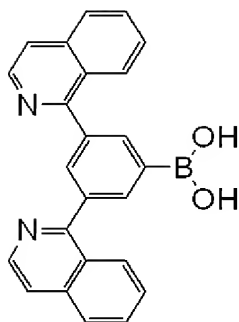
【0 3 0 3】

＜実施例 1 3 1（例示化合物 No. X-2 4 4 の合成）＞

実施例 1 の化合物 A の代わりに、化合物 B を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物 Ao を用いる以外は実施例 1 と同様の方法で例示化合物 No. X-2 4 4 を合成する事が出来る。

【0 3 0 4】

【化 7 9】



化合物A<sub>o</sub>

【0305】

＜実施例132（例示化合物N<sub>o</sub>. X-252の合成）＞

実施例1の2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物A<sub>m</sub>を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N<sub>o</sub>. X-252を合成する事が出来る。

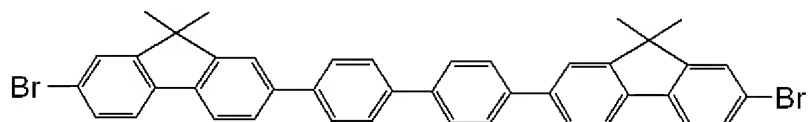
【0306】

＜実施例133（例示化合物N<sub>o</sub>. X-265の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物A<sub>p</sub>を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N<sub>o</sub>. X-265を合成する事が出来る。

【0307】

【化80】



化合物A<sub>p</sub>

【0308】

＜実施例134（例示化合物N<sub>o</sub>. X-280の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物A<sub>p</sub>を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物A<sub>m</sub>を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N<sub>o</sub>. X-280を合成する事が出来る。

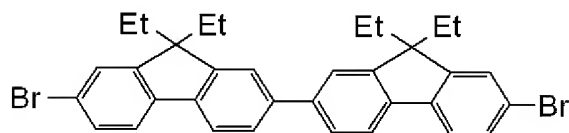
【0309】

＜実施例135（例示化合物N<sub>o</sub>. X-363の合成）＞

実施例1の化合物Aの代わりに、化合物A<sub>q</sub>を用い、2-ビフェニルボロン酸の代わりに化合物A<sub>m</sub>を用いる以外は実施例1と同様の方法で例示化合物N<sub>o</sub>. X-363を合成する事が出来る。

【0310】

【化81】

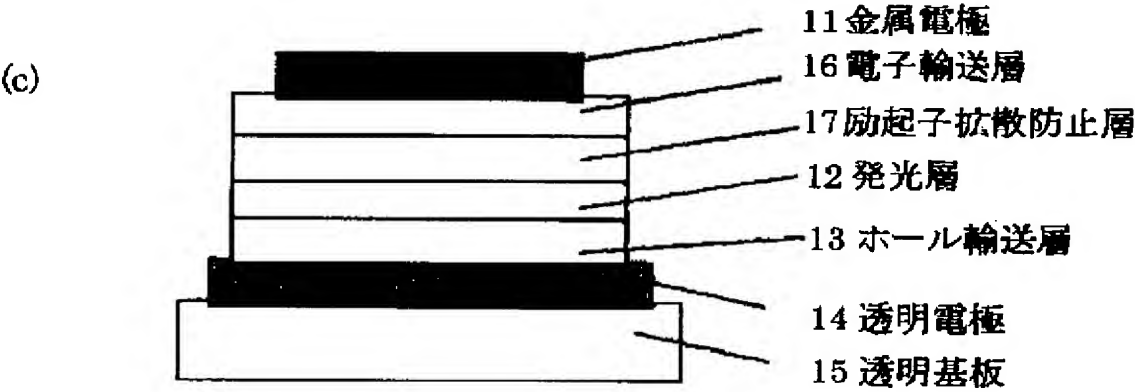
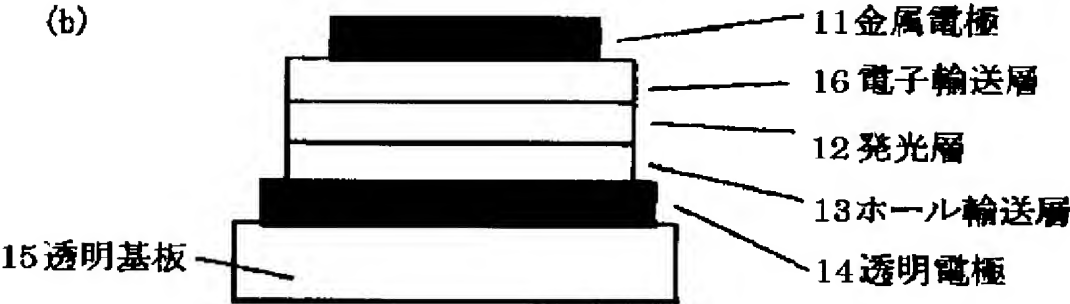
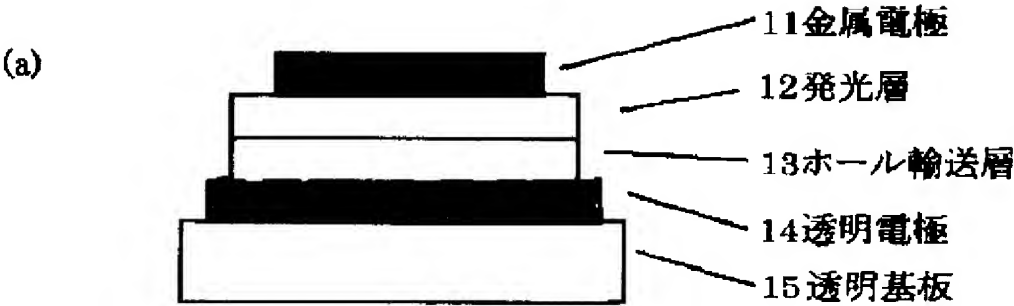


化合物A<sub>q</sub>

【図面の簡単な説明】

【0311】

【図1】 本発明の発光素子の一例を示す図である。



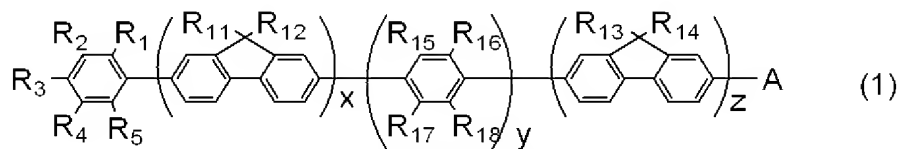
【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 有機EL素子用化合物として好適に使用し得る新規な化合物を提供する。

【解決手段】 下記一般式（１）で示される化合物。

【化１】



（ $x$ ， $y$ ， $z$ は $0 \sim 3$ の整数であり、 $x + z \geq 1$ である。）

$R_3$ ， $R_{15} \sim R_{18}$ は水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基を示す。

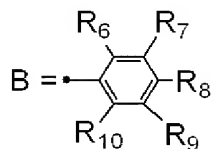
$R_1$ ， $R_2$ ， $R_4$ ， $R_5$ はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有しても良いアリール基を示し、少なくとも一つは置換基を有しても良いアリール基である。

$A$ は水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基または下記 $B$ を示す。

$R_{11} \sim R_{14}$ はそれぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基を示す。

ベンゼン環上の $CH$ は $N$ 原子に置き換えられても良い。）

【化２】



（ $R_6 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に水素原子、直鎖状または分岐状のアルキル基、置換基を有してもよいアリール基を示す。）

【選択図】 なし

## 出願人履歴

0 0 0 0 0 1 0 0 7

19900830

新規登録

5 9 5 0 1 7 8 5 0

東京都大田区下丸子3丁目30番2号

キャノン株式会社